

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

MÉMOIRE PRÉSENTÉ À
L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES

COMME EXIGENCE PARTIELLE
DE LA MAÎTRISE EN PHYSIQUE

PAR
YULIA ZAITSEVA

RÔLE DU DÉPÔT ET DU SUBSTRAT LORS DE LA MISE
EN ÉVIDENCE DE L'ANISOTROPIE D'UN PLAN DE CLIVAGE
(cas de l'Au et de l'Al sur (100)FLi)
et de l'Al sur (100)FK)

AVRIL 1998

Université du Québec à Trois-Rivières

Service de la bibliothèque

Avertissement

L'auteur de ce mémoire ou de cette thèse a autorisé l'Université du Québec à Trois-Rivières à diffuser, à des fins non lucratives, une copie de son mémoire ou de sa thèse.

Cette diffusion n'entraîne pas une renonciation de la part de l'auteur à ses droits de propriété intellectuelle, incluant le droit d'auteur, sur ce mémoire ou cette thèse. Notamment, la reproduction ou la publication de la totalité ou d'une partie importante de ce mémoire ou de cette thèse requiert son autorisation.

REMERCIEMENTS

Je tiens en premier lieu à remercier mon directeur de recherche, M. Jean-Claude Zanghi, Directeur du département de physique de l'UQAM, qui m'a introduit au sujet de ce mémoire et qui m'a accordé, tout au long de ma scolarité de maîtrise, une très grande disponibilité, un excellent support et une grande patience.

Je remercie également tous les professeurs qui ont contribué à ma formation et partagé avec moi leurs expériences.

Un merci particulier est adressé à M. Maxim Pospelov qui m'a aidé à traverser les moments difficiles.

Je remercie aussi ma famille, mes parents et tous mes amis qui, de près ou de loin, nous ont été toujours proches.

TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURES	vi
LISTE DES TABLEAUX.....	x
LISTE DES SYMBOLES	xi
LISTE DES ABRÉVIATIONS	xiii
RÉSUMÉ.....	xiv
INTRODUCTION	1
CHAPITRE I	
ÉQUATION DE BGY À DEUX DIMENSIONS	5
1.1 Équations de base	5
1.2 Équation intégró-différentielle de BGY	8
1.3 Fonction de corrélation	10
1.4 Conclusion	14
CHAPITRE II	
NOTION DE FONCTION DE DISTRIBUTION RADIALE	15
2.1 Mesure de la fonction de distribution radiale	15

2.2 Représentation physique de $g(r)$	16
2.3 Notion de cadrans	18

CHAPITRE III

ANALYSE NUMÉRIQUE	20
3.1 Équation de BGY	20
3.2 Limites d'intégration	21
3.3 Boucle itérative $I_{BGY} \Longleftrightarrow u(R)$	22
3.4 Deux types d'interpolations	22

CHAPITRE IV

RÉSULTATS	24
4.1 Analyse des résultats	24
4.1.1 Symétrie	24
4.1.2 Fonctions de distribution	26
4.1.3 Potentiels respectifs	28
4.1.4 Force d'interaction et facteur de réussite à l'acte de coalescence	29
4.1.5 Discussion	34
4.1.6 Conclusion	36
4.2 Étude comparative des résultats	37
4.2.1 Paramètre de maille et discordance paramétrique	37
4.2.2 Fonctions de distribution radiales et potentiels respectifs	40
4.2.3 Force d'interaction et facteur de réussite à l'acte de coalescence	47
4.2.4 Discussion	49
4.2.5 Conclusion	50

CONCLUSION GÉNÉRALE	54
APPENDICE A	
TABLEAUX	56
APPENDICE B	
PROGRAMMES	59
LISTE DES RÉFÉRENCES	62

LISTE DES FIGURES

Figure 1.	Représentation schématique de la différence entre les dépôts de LiF réalisés dans nos expériences (a) et par Geguzin et al. (b).	3
Figure 2.	Relation entre les différents paramètres de position.	11
Figure 3.	Plan de clivage (100) LiF du substrat et plan d'accrolement (111) d'un cristallite d' Au ou d' Al	25
Figure 4.	Schématisation des cadrans de 3°	26
Figure 5.	Fonctions de distribution radiales d'une collection de cristallites d'or sur (100) LiF dans les cadrans: 3; 45; 0(90); 12(78); 18(72); 27(63); 30(60) degrés par rapport au cadran 0° pris comme origine.	27
Figure 6.	Potentils d'interaction entre paire de cristallites d' Au obtenus par l'interpolation non-linéaire (a) et linéaire (b) dans le cadran 12(78) en fonction de $R/\langle d \rangle$	28
Figure 7.	Potentiel d'interaction entre paire de cristallites d' Au sur un substrat (100) LiF obtenus dans différents cadrans en fonction de $R/\langle d \rangle$ (interpolation non-linéaire).	28

Figure 8. Forces d'interaction entre cristallites d' <i>Au</i> sur un substrat (100) <i>LiF</i> en fonction de <i>R</i> pour les différents cadrans considérés dans la figure 5.	30
Figure 9. Facteur de réussite à l'acte de coalescence en fonction des cadrans considérés (direction azimutale d'approche des cristallites) cas de d' <i>Au</i> sur (100) <i>LiF</i> (interpolation linéaire).32	
Figure 10. Distribution radiale du facteur de réussite à l'acte de coalescence. Interpolation linéaire (cas de l' <i>Au</i> sur (100) <i>LiF</i>).	33
Figure 11. Facteur de réussite à l'acte de coalescence en fonction des cadrans considérés (direction azimutale d'approche des cristallites). Cas de l' <i>Au</i> sur (100) <i>LiF</i>	34
Figure 12. Distribution radiale du facteur de réussite à l'acte de coalescence. Interpolation non-linéaire (cas de l' <i>Au</i> sur (100) <i>LiF</i>).	35
Figure 13. Champ de contraintes étudié par Geguzin (1974). Cas du <i>LiF</i> /(100) <i>LiF</i> (... champ de contraintes constant, - champ de contraintes moyen).	36
Figure 14. Plan de clivage (100) <i>LiF</i> du substrat avec les paramètres de "maille" (<i>a'</i>) dans des directions différentes.	39
Figure 15. Plan de clivage (100) <i>KF</i> du substrat avec les paramètres de "maille" (<i>a'</i>) dans des directions différentes.	39

- Figure 16.** Fonctions de distribution radiales d'une collection de cristaux d'*Au* sur un plan (100)*LiF* pour les angles suivants :
a) 30°96; b) 45°; c) 11°31; d) 26°57; e) 18°43; f) 0°.....41
- Figure 17.** Fonctions de distribution radiales d'une collection de cristaux d'*Al* sur un plan (100)*LiF* pour les angles suivants :
g) 30°96; h) 45°; i) 11°31; j) 26°57; k) 18°43; l) 0°.....41
- Figure 18.** Fonctions de distribution radiales d'une collection de cristaux d'*Al* sur un plan (100)*KF* pour les angles suivants :
a) 8°13; b) 30°96; c) 11°31; d) 26°57; e) 18°43; f) 0°; g) 45°.....42
- Figure 19.** Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales présentées dans les figures: 16 (a,b,c,d,e,f) et 17 (g,h,i,j,k,l).....43
- Figure 20.** Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales en fonction de $R/\langle d \rangle$ entre 1.01 et 1.2 pour les cristaux: *LiF/Al* (a) 30°96, b) 11°31, c) 26°57, d) 18°43, e) 0°, f) 45°) et *LiF/Au* (g) 30°96, h) 11°31, i) 26°57, j) 18°43, k) 0° et l) 45°).....44
- Figure 21.** Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales en fonction de $R/\langle d \rangle$ entre 1.8 et 2.6 pour les couples: *LiF/Al* (a) 30°96, b) 11°31, c) 26°57, d) 18°43, e) 0° f) 45°) et *LiF/Au* (g) 30°96, h) 11°31, i) 26°57, j) 18°43, k) 0° et l) 45°).....45

- Figure 22.** Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales de la figure 18. 45
- Figure 23.** Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales en fonction de $R/\langle d \rangle$ entre 1.01 et 1.2 (a) $8^\circ 13$, b) $30^\circ 96$, c) $11^\circ 31$, d) $26^\circ 57$, e) $18^\circ 43$, f) 0° , g) 45°) et entre 1.8 et 2.4 (h) $8^\circ 13$, i) $30^\circ 96$, j) $11^\circ 31$, k) $26^\circ 57$, l) $18^\circ 43$, m) 0° n) 45°) pour le couple KF/Al 46
- Figure 24.** Force d'interaction entre paire de cristallites pour les couples LiF/Al (1) et LiF/Au (2) dans les directions suivantes : a) $8^\circ 13$, b) $30^\circ 96$, c) $11^\circ 31$, d) $26^\circ 57$, e) $18^\circ 43$, f) 0° , g) 45° 48
- Figure 25.** Force d'interaction entre paire de cristallites pour le couple KF/Al dans les directions suivantes : a) $30^\circ 96$, b) $11^\circ 31$, c) $26^\circ 57$, d) $18^\circ 43$, e) 0° , f) 45° 48

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1	Les différentes paramètres entre les deux techniques d'analyse	4
Tableau 4.1	Facteur de réussite à l'acte de coalescence correspondant aux sept potentiels de la figure 7.....	31
Tableau 4.2a	Les différents paramètres pour couples : LiF/Al , LiF/Au , KF/Al	52
Tableau 4.2b	Paramètres analysés pour couples : LiF/Al , LiF/Au , KF/Al	53
Tableau A1	Valeurs expérimentales de la fonction de distribution radiale dans différents cadrans, cas de l' $Al/(100)LiF$	56
Tableau A2	Valeurs expérimentales de la fonction de distribution radiale dans différents cadrans, cas de l' $Au/(100)LiF$	57
Tableau A3	Valeurs expérimentales de la fonction de distribution radiale dans différents cadrans, cas de l' $Al/(100)KF$	58

LISTE DES ABRÉVIATIONS

Au	Or
Al	Aluminium
BGY	Born-Green-Yvon
FDR	Fonction de distribution radiale
$[hkl]$	Indices de Miller
KCl	Chlorure de potassium
KBr	Bromure de potassium
LiF	Fluorure de lithium
KF	Fluorure de potassium
$(100)LiF$	Plan de clivage (100) du LiF
$(100)KF$	Plan de clivage (100) du KF
$(111)Au$	Plan d'accrolement des cristallites d' Au
$(111)Al$	Plan d'accrolement des cristallites d' Al

LISTE DES SYMBOLES

\AA	$(10^{-9}m)$
a'	"Paramètre de maille"
b	Distance interatomique
C^n	Fonction de corrélation
c	Constante
\bar{d} ou $< d >$	Diamètre moyen d'une collection de cristallites
$F(R)$	Force d'interaction entre paire de cristallites
ΔG	Barrière d'activation
$g^{(n)}$	Fonction de corrélation en présence de forces centrales
g_{ij}	Fonction de distribution radiale
k	Constante de Boltzmann ($J.K^{-1}$)
M	Misfit en %
N	Nombre de particules
$< N >$	Nombre moyen de particules
$P^{(n)}$	Fonction de distribution
R	Distance entre les particules 1 et 2 (\AA)
R^*	Constante des gaz parfaits
r	Distance entre les particules 2 et 3 (\AA)
\vec{r}_i	Vecteur position de la particule i par rapport à l'origine
r_{ij}	Distance entre la particule i et j en valeur absolue
s	Distance entre les particules 1 et 3 (\AA)
T	Température (K)
T_r	Température de recuit (K)
t_r	Temps de recuit (s)
U	Énergie potentielle totale du système
$u(r_{ij})$	Potentiel d'interaction entre paire de particules

\tilde{u}_{ij}	Potentiel d'interaction (cas anisotrope)
u_k	Potentiel à la k ème itération
Z	Distribution de Maxwell-Boltzmann
β	Facteur de collision efficace
δ	Facteur de réussite à l'acte de coalescence
Δ_i	Opérateur de Laplace
ρ	Nombre de cristallites par unité de surface
∇_i	Opérateur différentiel agissant sur les coordonnées de la particule i
Θ	Fonction échelon
σ	Écart-type

RÉSUMÉ

La cinétique de formation de couches minces présente un grand intérêt technique et scientifique. Ce intérêt est motivé par la qualité des composants électroniques. La caractérisation morphologique de couches minces est très importante pour les interactions entre cristallites sur leur substrat.

Dans ce mémoire, nous nous intéressons à l'anisotropie des interactions entre paire de cristallite sur un substrat. L'information contenue dans les fonctions de distribution radiales est alors exploitée avec la théorie de Born-Green-Yvon pour en extraire le potentiel d'interaction entre paire de cristallites. L'observation des résultats nous permet de saisir le rôle du substrat et du dépôt dans les processus d'interaction entre les cristallites lors d'une coalescence dynamique.

INTRODUCTION

Les couches minces suscitent un grand intérêt technique et scientifique car leurs domaines d'application sont très vastes et très variés. Le développement rapide du microscope électronique a permis de grands progrès dans l'étude des couches minces et son utilisation est devenue une technique standard. L'intérêt des recherches est motivé par la performance et la qualité des composants électroniques.

Nous proposons ici, un modèle qui représente la forme du champ de contrainte engendré sur le substrat par la présence d'un cristallite d'or. Ce modèle est basé sur les travaux de Geguzin et al. (1974) et de Matsokin (1993) qui ont réussi, sur une plus grande échelle, à capter de visu des "rosettes de frittage". Le champ de contrainte développé lors d'un mécanisme de frittage se présente sous la forme de lobes symétriques qui s'étendent bien au-delà des dimensions du dépôt, un peu comme un trèfle à quatre feuilles.

Des auteurs tels que Geguzin et al. ont analysé les structures de dislocation ("rosettes de frittage") qui se forment sur un substrat de fluorure de lithium après avoir recuit un dépôt amorphe de même nature à des températures élevées.

Matsokin a étudié les deux mécanismes de relaxation de contraintes qui surgissent dans la zone de diffusion après avoir recuit les cristaux de nature différente à des températures élevées. Il réussit à montrer que ces mécanismes sont la cause de formation de dislocations, de fissures et de pores à la périphérie du cristallite et dans le substrat.

La nature de ces défauts dépend de la géométrie des cristaux et de la solubilité d'un composant dans l'autre. Il a utilisé des monocristaux d'halogénures alcalins, fraîchement clivés (la surface de clivage est un plan (100)), sur laquelle a été placée des particules monocristallines de nature différente. La dimension des particules

était comprise entre $10\ \mu\text{m}$ et $2\ \text{mm}$. Après avoir recuit à des températures $T > 0.5\ T_{ip}$ ($T = 400 - 600^\circ$, T_{ip} est le point de fusion de l'halogénure alcalin) et pendant des temps compris entre 15 min et 120 min, les témoins ont été refroidis jusqu'à la température ambiante avec des vitesses de 2×10^{-2} à $4 \times 10^{-2}\ \text{K} \cdot \text{s}^{-1}$. La structure du substrat autour du contact était analysée à l'aide de la microscopie optique.

Dans notre cas, nos expériences sont réalisées dans une enceinte ultra-vide sous une pression résiduelle variant de 5×10^{-10} à 2×10^{-12} torr et dans l'obscurité totale. Un cristal de fluorure de lithium (LiF) est alors clivé. Ce clivage permet d'exposer à la température ambiante, une surface $(100)\text{LiF}$ quasi-parfaite à un jet de vapeur d'or. Bien que cette surface de l'ordre du mm^2 soit très lisse, elle se présente, après le clivage, sous forme de paliers très étendus. Pour identifier ces barrières physiques, lors de l'observation en microscopie électronique, il a été convenu d'orienter le jet de vapeur d'or de 30° par rapport à la normale du plan de clivage.

Pour nous permettre de réaliser des dépôts sous les mêmes conditions expérimentales, tout un appareillage fut incorporé à l'intérieur d'une l'enceinte à ultra-vide. Ainsi, les étapes de clivage, de vaporisation et de recuit se déroulent à l'intérieur même de l'enceinte sans remontée de pression. La durée de l'évaporation dépend des objectifs et de l'expérience. Dans notre cas, pour obtenir une collection de cristallites dont le diamètre moyen (\bar{d}) est de l'ordre de $50\ \text{\AA}$, il a fallu fixer le temps d'évaporation entre 30 et 90 secondes. Lorsque le processus de déposition est terminé, on élève la température du dépôt à $100\ ^\circ\text{C}$. C'est une température que l'on retrouve lors de la fabrication des couches minces. Les structures de couches minces sont généralement étudiées en microscopie électronique.

Il faut remarquer que les dépôts de LiF utilisés par Geguzin et Matsokin sont mille fois plus grands que les cristallites d'or que nous allons étudier.

Même si les dimensions du dépôt de LiF amorphe sont très supérieures à nos dépôts, la notion d'un champ de contrainte non-uniforme autour du dépôt ("rosette de frittage") est envisageable à des échelles beaucoup plus petites (voir fig.1).

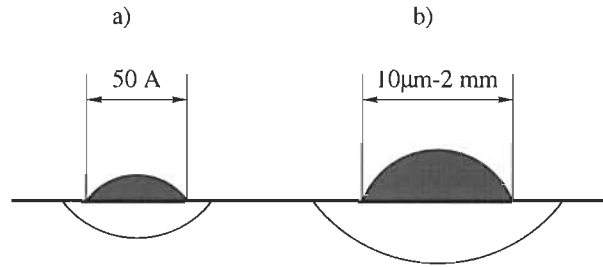


Figure 1. Représentation schématique de la différence entre les dépôts de LiF réalisés dans nos expériences (a) et ceux Geguzin et al. (b).

On peut considérer que les conditions expérimentales de ces auteurs sont très différentes de nos conditions, mais nous avons obtenu la même forme du champ de contrainte "rosette de frittage". La forme du champ de contrainte est difficile à observer, car une des étapes servant à fabriquer les répliques de transfert est de dissoudre le substrat (LiF) dans l'eau afin de pouvoir observer la disposition des cristallites les uns par rapport aux autres à l'aide de la microscopie électronique.

On va montrer que l'existence de champ de contrainte dans la zone de contact est un résultat de la discordance paramétrique (misfit) des réseaux substrat - dépôt. C'est pour cette raison, que nous avons choisi des dépôts différents (LiF/Au et LiF/Al) sur un même substrat et des substrats différents (LiF/Al et KF/Al) pour un même dépôt. Ce choix est fait pour mettre en évidence le rôle du substrat et du dépôt dans les processus de coalescence dynamique.

Le but principal de ce mémoire sera donc à mettre en relief l'anisotropie du substrat par l'analyse de fonctions de distribution radiales.

Tableau 1

Les différents paramètres entre les deux techniques d'analyse.

N	paramètres	expériences faites par Matsokin	nos expériences
1	substrat	monocristaux: <i>KCl, NaCl, KBr.</i>	monocristal <i>LiF</i>
2	plan de clivage	(100)	(100)
3	dépôt	monocristaux: <i>KCl, NaCl, KBr.</i>	cristallites métalliques d'Au ou Al
4	diamètre moyen de particules	10 μm -2 mm	50 Å
5	atmosphère	l'air ambiant	pression résiduelle: 5 10^{-10} à 2 10^{-12} torr
6	température de recuit	400 < T < 600 °C	100 °C
7	temps de recuit	900 < t < 7200 s	30 < t < 90 s
8	défaut	dislocations, fissures (contraintes mécaniques)	pas de défaut (contraintes mécaniques)
9	méthode d'analyse	microscopie optique ($\times 1500$)	microscopie électronique ($\times 400000$)

CHAPITRE I

ÉQUATION DE BGY À DEUX DIMENSIONS

Depuis 1935, des auteurs tels que Yvon, Born et Green ont essayé de déterminer une théorie s'inspirant de la théorie cinétique des gaz qui s'applique aux liquides. Ces approximations permettent d'extraire le potentiel d'interaction entre paire de cristallites $u(r)$ à partir de la fonction de distribution radiale $g(r)$ pour des systèmes liquides tridimensionnels. Kappus (1978) dérive une forme intégrodifférentielle de l'approximation de BGY pour des systèmes bidimensionnels dans le cas d'interactions anisotropes. Sa démarche consiste à généraliser la théorie pour qu'elle puisse être applicable à tous les genres d'interactions (isotrope et anisotrope). Toute cette théorie fut par la suite reprise et vérifiée par Guerchi (1994). On peut trouver la démonstration complète de l'équation générale de BGY à deux dimensions dans son mémoire.

1.1 Équations de base

Considérons un système classique de N particules (cristallites) sur une surface S d'un substrat portée à la température T . Notre système est fermé et homogène. Soit $U(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) = U$ son énergie potentielle lorsqu'il est dans la configuration $\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N$.

L'énergie potentielle s'écrit:

$$U(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N) = \sum_{1 \leq i \leq j \leq N} U(\vec{r}_i, \vec{r}_j), \quad (1.1)$$

où $U(\vec{r}_i, \vec{r}_j) = U(\vec{r}_{ij})$ est l'énergie potentielle mutuelle de deux particules se trouvant respectivement aux points \vec{r}_i et \vec{r}_j . La probabilité que les particules 1, 2, ..., N soient respectivement dans $d\vec{r}_1, d\vec{r}_2, \dots, d\vec{r}_N$ est égale à :

$$\frac{\exp[-U/kT] d\vec{r}_1 \dots d\vec{r}_N}{Z}, \quad (1.2)$$

où Z est la fonction de partition définie par

$$Z = \int \dot{S} \cdot \exp[-U/kT] d\vec{r}_1 \dots d\vec{r}_N, \quad (1.3)$$

dans laquelle k est la constante de Boltzmann.

La probabilité $P^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N) d\vec{r}_1 \dots d\vec{r}_N$ que les particules 1, 2, ..., n soient respectivement dans $d\vec{r}_1, d\vec{r}_2, \dots, d\vec{r}_n$, indépendamment de la configuration des $N - n$ particules restantes, est la somme de toutes les probabilités (1.2) consistantes avec la configuration des particules 1 à n. Par conséquent nous pouvons écrire :

$$P^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n) = \frac{\int \dot{S} \cdot \exp[-U/kT] d\vec{r}_{n+1} \dots d\vec{r}_N}{Z}. \quad (1.4)$$

Il s'ensuit que la probabilité qu'une particule quelconque (et non nécessairement la particule 1) soit dans $d\vec{r}_1$, une deuxième dans $d\vec{r}_2, \dots$, et une autre dans $d\vec{r}_n$, est

$$\begin{aligned} P^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n) &= \frac{N!}{(N-n)!} P^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n), \\ &= \frac{N!}{(N-n)!} \frac{\int \dot{S} \cdot \exp[-U/kT] d\vec{r}_{(n+1)} \dots d\vec{r}_N}{Z}. \end{aligned} \quad (1.5)$$

Cela vient du fait qu'on a N choix pour $d\vec{r}_1$ (n'importe laquelle N particules peut se trouver dans $d\vec{r}_1$) $N - 1$ choix pour $d\vec{r}_2, \dots$, et $N - n + 1$ choix pour $d\vec{r}_n$ ce qui donne :

$$N(N - 1) \dots (N - n + 1) = \frac{N!}{(N - n)!},$$

possibilités. La normalisation de cette dernière probabilité donne :

$$\int_S \rho^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n) d\vec{r}_1 \dots d\vec{r}_n = \frac{N!}{(N - n)!}. \quad (1.6)$$

Notre système est homogène et on sait que dans un tel ensemble de particules, tous les points \vec{r}_1 à l'intérieur de S sont équivalents. En d'autres termes, la fonction $\rho^{(1)}(\vec{r}_1)$ est indépendante de \vec{r}_1 :

$$\begin{aligned} \int_S \rho^{(1)}(\vec{r}_1) d\vec{r}_1 &= \rho^{(1)} \int_S d\vec{r}_1, \\ &= \rho^{(1)} S. \end{aligned} \quad (1.7)$$

D'autre part, en mettant $n = 1$ dans l'équation (1.6), on obtient :

$$\int_S \rho^{(1)}(\vec{r}_1) = N. \quad (1.8)$$

En combinant (1.7) et (1.8), on trouve la relation suivante :

$$\rho^{(1)} = \frac{N}{S} = \rho, \quad (1.9)$$

où ρ est la densité macroscopique donnant le nombre de cristallites par unité de surface du substrat.

Par ailleurs, si la probabilité de trouver la particule 1 dans $d\vec{r}_1$ est indépendante de probabilité de trouver la particule 2 dans $d\vec{r}_2$, etc., alors on a :

$$P^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n) = [P^{(1)}(\vec{r}_1)] \dots [P^{(1)}(\vec{r}_n)]. \quad (1.10)$$

1.2 Équation intégrro-différentielle de BGY

Dans le memoire de Guerchi(1994) on peut trouver la démonstration complète de l'équation intégrro-différentielle de BGY. On a transformé l'équation (1.5) dans cette équation en utilisant le processus suivant : d'abord on a appliqué l'opérateur logarithmique à chaque membre de cette relation, ensuite on a différencié par rapport aux coordonnées de la particule. Les termes qui ne dépendent pas des coordonnées des N particules sont nuls. De la même façon, on peut écrire cette équation sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} -kT \nabla_1 \ln[\rho^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n)] &= \sum_{i=2}^n \nabla_1 u(r_{1i}) + \\ &+ \sum_{i=n+1}^N \int_S \nabla_1 u(r_{1i}) \left[\frac{1}{N-n} \frac{\rho^{(n+1)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n, \vec{r}_i)}{\rho^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n)} \right] d\vec{r}_i. \end{aligned} \quad (1.11)$$

C'est ici que l'équation devient intéressante puisque nous voulons, en pratique, réduire le problème à celui d'un système à trois particules, la troisième particule étant représentative de l'ensemble des autres particules. Mais, comme l'intégrale

$$\int_S \nabla_1 u(r_{1i}) \frac{\rho^{(n+1)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n, \vec{r}_i)}{\rho^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n)} d\vec{r}_i,$$

est indépendante de l'indice i et garde la même valeur pour les $(N - n)$ termes de la somme $\sum_{i=n+1}^N$, alors, en prenant $i = n + 1$, on peut simplifier l'équation (1.11) et écrire :

$$\begin{aligned}
-kT \nabla_1 \ln[\rho^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n)] &= \sum_{i=2}^n \nabla_1 u(r_{1i}) + \\
+ \int_S \frac{\rho^{(n+1)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n, \vec{r}_i)}{\rho^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n)} \nabla_1 u(r_{1(n+1)}) d\vec{r}_{n+1}.
\end{aligned} \quad (1.12)$$

Pour $n = 2$, on a :

$$-kT \nabla_1 \ln[\rho^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)] = \nabla_1 u(r_{12}) + \int_S \frac{\rho^{(3)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3)}{\rho^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)} \nabla_1 u(r_{13}) d\vec{r}_3. \quad (1.13)$$

La relation (1.11) pour $n=1,2,3,\dots,N$, mène à une série d'équations différentielles dont les inconnues sont les $\rho^{(n)}$. Chacune de ces équations, exceptée la dernière, comprend la solution de la suivante. *L'Approximation de superposition* introduite par Kirkwood (1935) nous procure un lien explicite entre $\rho^{(3)}$ et $\rho^{(2)}$ de la façon suivante :

$$\rho^{(3)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3) = \frac{\rho^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rho^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_3) \rho^{(2)}(\vec{r}_2, \vec{r}_3)}{\rho^{(1)}(\vec{r}_1) \rho^{(1)}(\vec{r}_2) \rho^{(1)}(\vec{r}_3)}, \quad (1.14)$$

qui exprime la densité de probabilité de rencontrer un triplet $(\vec{r}_1 \vec{r}_2 \vec{r}_3)$ par le produit des trois densités de rencontrer la paire $(\vec{r}_1 \vec{r}_2)$, $(\vec{r}_1 \vec{r}_3)$ et $(\vec{r}_2 \vec{r}_3)$ divisé par le cube du nombre de particules par unité de surface puisque

$\rho^3 = \rho^{(1)}(\vec{r}_1) \rho^{(1)}(\vec{r}_2) \rho^{(1)}(\vec{r}_3)$. Tiré de Hill (1956) où il est démontré que :

$$\rho^{(1)}(\vec{r}_1) = \frac{N}{S} = \rho. \quad (1.15)$$

Ceci nous permet de simplifier la forme de l'équation (1.13) à l'aide des relations (1.14) et (1.15) :

$$-kT \nabla_1 \ln \rho^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \nabla_1 u(r_{12}) + \frac{1}{\rho^3} \int_S \rho^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_3) \rho^{(2)}(\vec{r}_2, \vec{r}_3) \nabla_1 u(r_{13}) d\vec{r}_3 \quad (1.16)$$

Cette équation est générale et peut servir comme équation de base pour élaborer la théorie relative aux systèmes bidimensionnels présentant des interactions anisotropes.

1.3 Fonction de corrélation

La probabilité de trouver la particule 1 dans $d\vec{r}_1$ est indépendante de la probabilité de trouver la particule 2 dans $d\vec{r}_2, \dots$, etc, mais quand ces probabilités sont dépendantes, on doit introduire une fonction de corrélation. L'équation pour le cas des probabilités dépendantes s'écrit :

$$P^{(n)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_n) = P^{(1)}(\vec{r}_1) \dots P^{(1)}(\vec{r}_n) C^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n). \quad (1.17)$$

Comme précédemment on peut définir une autre fonction de corrélation avec la relation suivante :

$$\rho^{(n)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_n) = \rho^{(1)}(\vec{r}_1) \dots \rho^{(1)}(\vec{r}_n) g^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n). \quad (1.18)$$

Lorsqu'on est en présence de forces centrales, pour $n = 2$, la fonction $g^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n)$ (Kirkwood 1935) est appelée "*fonction de distribution radiale, (RDF)*". Les deux fonctions de corrélation sont reliées par la formule suivante (Hill 1956) :

$$g^{(n)} = \frac{C^{(n)} N!}{N^n (N - n)!}. \quad (1.19)$$

On peut écrire l'équation (1.18) pour $n = 2$:

$$\rho^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \rho^2 g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2). \quad (1.20)$$

La fonction de corrélation $g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \equiv g^{(2)}(r_{12}) = g_{12}$ conduit, pour un système où les forces intercrystallites sont centrales, à la fonction de distribution radiale

$g(r)$.

Robado (1995) a réécrit l'équation de BGY en utilisant la fonction de distribution radiale pour quatre particules. Il a distingué le cas isotrope du cas anisotrope en introduisant la notation suivante $\tilde{u}_{ij} = u(r_{ij})/kT$. Il a trouvé la forme intégrale de l'équation de BGY à deux dimensions dans le cas d'interactions anisotropes :

$$\ln g_{12} + \tilde{u}_{12} = (2\pi)^{-1} \rho \int_S [g_{23} - 1] d\vec{r}_3 \int_S g_{43} \nabla_4 \tilde{u}_{43} \frac{\vec{r}_{14}}{|\vec{r}_{14}|^2} d\vec{r}_4. \quad (1.21)$$

La résolution numérique de cette équation comporte une difficulté majeure : l'échantillonnage ne permet pas de mesurer avec précision la fonction de corrélation dans une direction donnée. Devant cet obstacle, Zanghi a eu l'idée de mesurer la fonction g_{ij} dans différents secteurs de même ouverture et suivant une même direction. Cette méthode oblige à supposer que la distribution des cristallites dans chaque secteur est isotrope. Par conséquent il faut traiter le problème pour chaque direction avec l'équation de BGY à deux dimensions dans le cas d'interactions isotropes.

La figure 2. représente le modèle utilisé pour obtenir la relation (1.21)

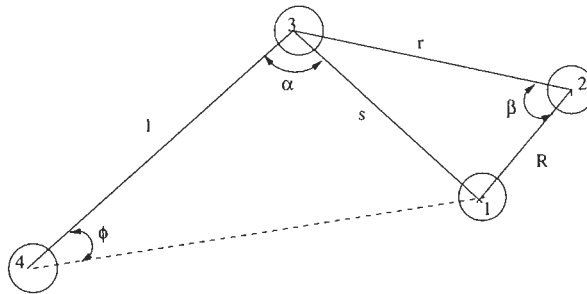


Figure 2. Relation entre les différents paramètres de position.

Dans cette figure les distances intercristallites sont définies par les lettres

r, s, R et l . On peut écrire les relations suivantes :

$$|r_{14}|^2 = l^2 + s^2 - 2ls \cos \alpha, \quad (1.22)$$

$$\vec{r}_{34} \cdot \vec{r}_{14} = |r_{14}|l \cos \phi. \quad (1.23)$$

où :

$$\cos \phi = \frac{l - s \cos \alpha}{|r_{14}|}. \quad (1.24)$$

Il est possible d'écrire l'équation (1.21) sous la forme :

$$\ln g_{12} + \tilde{u}_{12} = (2\pi)^{-1} \rho \int_S [g_{23} - 1] d\vec{r}_3 \int_S \frac{g_{43} \tilde{u}_{43} l (l - s \cos \alpha)}{l(l^2 + s^2 - 2ls \cos \alpha)} d\vec{r}_4. \quad (1.25)$$

Les fonctions de distributions radiales g_{12}, g_{23} et g_{43} de même que le potentiel \tilde{u}_{12} et \tilde{u}_{43} peuvent être représentés suivant la nouvelle notation :

$$\ln g(R) + \tilde{u}(R) = (2\pi)^{-1} \rho \int_S [g(r) - 1] d\vec{r}_3 \int_0^\infty g(l) \tilde{u}(l) dl \times \underbrace{\int_0^{2\pi} \frac{(l - s \cos \alpha)}{(l^2 + s^2 - 2ls \cos \alpha)} l d\alpha}_I \quad (1.26)$$

On a posé $d\vec{r}_4 = l dl d\alpha$ dans l'équation (1.25) qui représente l'élément de surface en coordonnées polaires. Dans le mémoire de Robado on peut trouver l'évaluation complète de l'intégrale I . La solution de cette intégrale est :

$$I = 2\pi \Theta(l - s), \quad (1.27)$$

où, Θ est la fonction échelon définie par :

$$2\pi\Theta(l-s) = \begin{cases} 1 & \text{si } l > s \\ 0 & \text{si } l < s \end{cases} \quad (1.28)$$

On peut écrire aussi l'élément de surface $d\vec{r}_3$ en coordonnées polaires, $d\vec{r}_3 = r dr d\beta$ et s en termes de $\cos \beta$. Alors, l'équation (1.26) peut s'écrire :

$$\ln g(R) + \tilde{u}(R) = \rho \int_0^\infty r[g(r) - 1] dr \int_0^\infty g(l)\tilde{u}(l) dl \int_0^{2\pi} \Theta[l - (R^2 + r^2 - 2Rr \cos \beta)^{1/2}] d\beta. \quad (1.29)$$

La fonction échelon suggère que $l > (R^2 + r^2 - 2Rr \cos \beta)^{1/2}$ pour que l'intégrale, évaluée de 0 à 2π dans la relation (1.29), soit non-nulle. On va changer aussi l'ordre d'intégration sur r et l . Ainsi lorsque l passe de 0 à l'infini, les limites d'intégration sur r sont comprises entre $|R - l|$ et $|R + l|$. Donc,

$$\ln g(R) + \tilde{u}(R) = 2\rho \int_0^\infty g(l)\tilde{u}(l) dl \int_{|R-l|}^{R+l} r[g(r) - 1] \cos^{-1} \frac{R^2 + r^2 - l^2}{2rR} dr. \quad (1.30)$$

Lorsque la particule 4 (fig.2), se trouve très proche de la particule 1, les distances l et s deviennent comparables et la relation (1.30) est alors l'équation de BGY à deux dimensions dans le cas d'interactions isotropes. Elle peut être évaluée suivant la méthode décrite par Chan (1977) qui est basée sur une méthode itérative. L'équation (1.30) se décompose comme suit :

$$u(R) = -kT \ln g(R) + \rho I_{BGY}(R), \quad (1.31)$$

où

$$I_{BGY}(R) = \int_0^\infty g(s)\tilde{u}(s)K_{BGY}(R, s)ds, \quad (1.32)$$

et

$$K_{BGY}(R, s) = \frac{1}{2} \int_{|R-L|}^{R+l} r[g(r) - 1][\sin^{-1}(Z_1) - \sin^{-1}(Z_2)]dr, \quad (1.33)$$

avec

$$Z_1 = \frac{R^2 - (s^2 + r^2)}{2rs}, \quad (1.34)$$

$$Z_2 = \frac{(s^2 + r^2)R^2 - (s^2 - r^2)^2}{2rsR^2}. \quad (1.35)$$

L'avantage de l'approximation de BGY est la convergence rapide vers le potentiel intercrystallite de paire et ceci quelque soit le potentiel initial choisi pour commencer l'itération.

1.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons trouvé une approximation mathématique de BGY à deux dimensions. Cette approximation joue un rôle très important quand les propriétés physiques de notre système dépendent de la direction. Cette théorie permet l'extraction du potentiel d'interaction intercrystallites $u(r)$ à partir de données expérimentales sur la fonction de distribution radiale $g(r)$.

CHAPITRE II

NOTION DE FONCTION DE DISTRIBUTION RADIALE

La notion de fonction de distribution radiale n'existe que si le système étudié est isotrope et les fonctions de corrélations $g(r_{ij})$ symétriques. Leur valeur moyenne est la fonction $g(r)$ mesurée expérimentalement qui mène au potentiel isotrope $u(r)$. Il faut bien comprendre ici le concept de fonction de distribution radiale, c'est-à-dire, comment la fonction $g(r)$ est mesurée et quelle est sa représentation physique.

2.1 Mesure de la fonction de distribution radiale

La méthode utilisée pour mesurer ces fonctions de distribution va permettre de vérifier si les interactions entre paire de cristallites sont anisotropes et si cette anisotropie est due aux déformations mécaniques induites par les cristallites dans le substrat.

Après la condensation d'un dépôt sur la surface du substrat (ex.: $Au/(100)LiF$), on peut obtenir par la microscopie électronique les différentes micrographies montrant la variation du diamètre moyen des cristallites avec la température du recuit. On a mentionné dans l'introduction toutes les étapes permettant de réaliser

une telle micrographie. La collection de cristallites obtenu présente un diamètre moyen $\bar{d} = 50 \text{ \AA}$. Les cristallites d'une telle collection s'activent d'un mouvement Brownien, et prennent des positions d'équilibre les uns par rapport aux autres. Après un certain temps, on fige le tout en déposant une couche de carbone de 200 \AA d'épaisseur. La couche de carbone emprisonne les cristallites et forme, une fois le LiF (ou le KF) dissout dans de l'eau distillée, ce que l'on appelle une réplique de transfert.

C'est donc, à partir de cette réplique de transfert que l'on peut cibler une région donnée au microscope électronique. Un balayage électronique de la micrographie permet de déterminer la dimension, la forme ainsi que la position (x, y) du centre de masse de tous les cristallites présents sur le plan de clivage. Il est possible de sélectionner des collections de cristallites présentant des écart-types très petits (de l'ordre de 1 \AA), autour d'un diamètre moyen bien déterminé ($\sim 50 \text{ \AA}$). Une région envahie par des impuretés ou des défauts de surface va influencer le processus de formation des cristallites et par conséquent ceux-ci présenteront des tailles très diversifiées. Un écart-type important aura une influence néfaste sur la pente initiale de notre fonction distribution radiale. Donc, pour s'assurer que la fonction débute bien à 50 \AA , il est important que l'écart-type soit le plus petit possible.

2.2 Représentation physique de $g(r)$

La mesure de la fonction $g(r)$ découle de la représentation physique des équations du chapitre 1. On va reprendre l'équation (1.5) et en intégrant de chaque côté l'égalité sur les coordonnées 1 à n on peut réussir à donner un sens à la fonction $g(r)$. Alors :

$$\int_{\vec{S}} \int \rho^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n) d\vec{r}_1 \dots d\vec{r}_n = \frac{N!}{(N-n)!} \frac{\int_{\vec{S}} \int \exp[-U/kT] d\vec{r}_1 \dots d\vec{r}_n d\vec{r}_{n+1} \dots d\vec{r}_N}{Z}. \quad (2.1)$$

En utilisant l'équation (1.3), on peut simplifier le membre de droite de (2.1) puisque dans le numérateur on retrouve la même quantité Z qu'au dénominateur. Il va donc rester au membre de droite un nombre qui sera déterminé par le choix du système, soit une, deux, trois particules, etc. :

$$\int_{\vec{S}} \int \rho^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n) d\vec{r}_1 \dots d\vec{r}_n = \frac{N!}{(N-n)!}. \quad (2.2)$$

Par exemple, si $n = 1$

$$\rho^{(1)} = N/S = \rho. \quad (2.3)$$

Pour $n = 2$:

$$\int_{\vec{S}} \int \rho^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 = N(N-1). \quad (2.4)$$

Et, si on utilise la propriété (1.20) avec l'équation précédente on obtient :

$$\rho^2 g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = N(N-1)P^{(2)}. \quad (2.5)$$

Avec l'aide cette dernière équation on peut écrire la probabilité de rencontrer un cristallite particulier dans l'élément de surface $d\vec{r}_1$ au point \vec{r}_1 quand un autre se trouve dans $d\vec{r}_2$ au point \vec{r}_2 :

$$\frac{\rho^2 g^{(2)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)}{N} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 = (N-1)P^{(2)} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2. \quad (2.6)$$

Donc, si un cristallite donné est fixé au point \vec{r}_1 , la probabilité d'observer un deuxième cristallite (non spécifié) dans $d\vec{r}_2$ au point \vec{r}_2 peut s'écrire :

$$const \times g^{(2)}(r_{12})d\vec{r}_2. \quad (2.7)$$

On peut trouver la constante facilement, sachant que l'intégration, de l'expression (2.7) sur toute la surface, doit nous donner le nombre de cristallites restants sur le plan, soit $N - 1$. Alors :

$$const \times \int g^{(2)}(r_{12})d\vec{r}_2 = N - 1. \quad (2.8)$$

La comparaison de cette équation avec (2.3) et (2.5), nous indique que la constante est égale à ρ . Le nombre de cristallites qui se trouvent à une distance comprise entre r et $r + dr$ d'un cristallite spécifié, donc :

$$< N > = \rho g^{(2)}(r)2\pi r dr. \quad (2.9)$$

Cette relation caractérise la fonction de distribution radiale $g(r)$ qui peut s'écrire:

$$g(r) = \frac{\rho(r)}{\rho}. \quad (2.10)$$

où $\rho(r)$ représente la densité moyenne de cristallites dans un anneau d'épaisseur dr et de rayon r autour de la particule prise comme origine.

Donc la fonction $g^{(2)}(r_{12})$ possède les mêmes propriétés que la fonction de distribution radiale $g(r)$ qui peut être mesurée de façon expérimentale.

2.3 Notion de cadrans

On a déterminé que la fonction de corrélation C , joue le même rôle que $g(r)$ mais dans une direction donnée. Si cette fonction de corrélation peut être

mesurée, nous pouvons obtenir une information sur la nature des interactions intercrystallites de paire suivant certaines directions. Comme on a mentionné, pour chaque micrographie, on enregistre les coordonnées (x,y) d'à peu près 500000 cristallites et on calcule par la suite toutes les distances intercrystallites r . Si ρ est la densité moyenne de cristallites par unité de surface, $g(r) = \rho(r)/\rho$ représente la fonction de distribution radiale. Ici, cette fonction est isotrope mais rien n'empêche de mesurer celles qui sont anisotropes et qui fournissent des informations très importantes sur les interactions intercrystallites se faisant dans directions privilégiées. Dans ce cas, la fonction qu'on trouve dépend nécessairement de la direction \vec{r}_{ij} selon laquelle les cristallites interagissent.

Pour bien mettre en évidence l'anisotropie, nous allons réduire l'ouverture des cadrans en deçà de 1 degré pour ainsi découpler le plus possible les interactions. Il est donc possible à l'aide de ces différentes fonctions de distribution et de l'équation de BGY, cas isotrope, d'obtenir les potentiels d'interaction respectifs entre cristallites pour une direction donnée.

CHAPITRE III

ANALYSE NUMÉRIQUE

Dans ce chapitre on va montrer les procédures numériques pour résoudre l'équation intégral-différentielle de BGY.

3.1 Équation de BGY

On peut trouver un potentiel intercrystallite de paire pour chaque fonction de distribution en utilisant les équations de BGY. Toute cette démonstration obtenue par Guerchi (1994) se résume aux équations ci-dessous:

$$u(R) = -kT \ln g(R) + \rho I_{BGY}(R), \quad (3.1)$$

où

$$I_{BGY}(R) = \int_0^\infty g(s) \tilde{u}(s) K_{BGY}(R, s) ds, \quad (3.2)$$

et

$$K_{BGY}(R, s) = \frac{1}{2} \int_{|R-s|}^{R+s} r [g(r) - 1] [\sin^{-1}(Z_1) - \sin^{-1}(Z_2)] dr, \quad (3.3)$$

avec

$$Z_1 = \frac{R^2 - (s^2 + r^2)}{2rs}, \quad (3.4)$$

$$Z_2 = \frac{(s^2 + r^2)R^2 - (s^2 - r^2)^2}{2rsR^2}, \quad (3.5)$$

où r, s et R sont respectivement les distances intercristallites entre 2 et 3, 1 et 3, et 1 et 2.

Nous allons aborder le problème en deux blocs. Le premier bloc, dans lequel le potentiel d'interaction entre cristallites n'intervient pas, consiste à évaluer l'équation (3.3) une seule fois et avec maximum de précision. Ce bloc fait partie du noyau de l'intégrale (3.2) qui forme, avec la relation (3.1), le deuxième bloc. Ce dernier est une boucle itérative qui s'arrête lorsque $u(R)$ est stationnaire.

3.2 Limites d'intégration

On peut trouver la démonstration complète de bornes d'intégration dans le mémoire de Robado (1995). L'équation (3.3), qui provient d'un modèle à trois particules ponctuelles est une intégrale évaluée sur r . La borne inférieure de cette intégrale (i.e. $|R - s|$), ne peut en aucun cas être inférieure à 50 Å pour des problèmes d'encombrement stérique. Ce qui se traduit par la condition $|R - s| \geq 50$ Å. Quant à la borne supérieure, elle ne cause aucun problème puisqu'elle est toujours égale à $(R + s)$. Il est important que la borne supérieure soit fixée de sorte que $(R + s)$ puisse encadrer les effets non-nuls provenant de l'intégrant. Ceci correspond bien avec la physique du problème : quand les particules 1 et 2 sont proches l'une de l'autre, l'influence de la troisième particule sur cette paire devient très vite négligeable lorsque celle-ci s'éloigne. Par contre lorsque R est grand, l'interaction entre les particules 1 et 2 étant faible l'effet de la troisième particule va perturber grandement l'interaction entre la paire de cristallites.

3.3 Boucle itérative $I_{BGY} \Longleftrightarrow u(R)$

Pour évaluer l'intégrale (3.2) on a besoin de la dérivée du potentiel $u(s)$. L'hypothèse des cadrans isotropes, nous permet de confondre u avec un potentiel intercrystallite moyen dans chaque cadran. Ce potentiel u est entièrement déterminé par la relation (3.1). Il est nécessaire, pour commencer l'itération, de faire le choix d'un potentiel initial. Lorsque l'influence de la troisième particule sur la paire est négligeable, le terme ρI_{BGY} de l'équation (3.1) peut être négligé. On peut écrire :

$$u_0(R) = -kT \ln g(R), \quad (3.6)$$

ce qui constitue un choix convenable pour un potentiel initial. Il permet d'évaluer un premier potentiel intercrystallite de paire qui est réintroduit dans l'équation (3.2) pour évaluer à nouveau I_{BGY} et ainsi de suite jusqu'à ce que la somme en valeur absolue des écarts entre $u_k(R_j)$ et $u_{k-1}(R_j)$ soit $< 10^{-4}$, ce qui en d'autres termes s'écrit :

$$\epsilon \equiv \sum_{j=1}^N |u_k(R_j) - u_{k-1}(R_j)| < 10^{-4}. \quad (3.7)$$

Cette condition est une mesure de satisfaction du potentiel final obtenu pour une fonction de distribution donnée.

3.4 Deux types d'interpolations

On a déjà mentionné que la fonction distribution radiale se trouve par interpolation. Celle-ci détermine la courbe de la fonction approximative qui correspond à l'argument et permet de construire une fonction approximative de $g(r)$ qui est obtenue expérimentalement. Nous avons choisi les deux types

d'interpolations: linéaire et non-linéaire. L'interpolation linéaire crée une fonction de distribution radiale approximative qui est constituée d'une série de points. Sa représentation graphique est une courbe représentée par une suite de petits segments. La fonction $g(r)$ obtenue à l'aide de ce type d'interpolation présente une dérivée très mouvementée.

Au contraire, la représentation graphique de la fonction de distribution radiale obtenue par une interpolation non-linéaire présente quant à elle une dérivée continue. Il est donc préférable d'utiliser une interpolation non-linéaire lorsque des dérivées sont manipulées dans des calculs numériques.

CHAPITRE IV

RÉSULTATS

4.1 Analyse des résultats

4.1.1 Symétrie

La méthode utilisée pour mesurer les fonctions de distribution radiales va permettre de vérifier si les interactions entre paire de cristallites sont anisotropes et si cette anisotropie est due aux déformations mécaniques induites par les cristallites dans le substrat.

Le plan de clivage $(100)LiF$ sur lequel ont été formés les cristallites d'or provient d'un réseau cubique à faces centrées composé d'ions de fluorure (F^-) et d'ions de lithium (Li^+), les rayons ioniques de deux éléments sont respectivement de 0.133 et 0.068 nm. Lors d'une perturbation mécanique en surface, les déformations résultantes dans le substrat sont différentes selon la direction cristallographique considérée. Comme on peut le voir dans la figure 3, les déformations engendrées par le cristallite suivant la direction $[001]$ seront différentes des déformations engendrées par le même cristallite le long d'une direction $[011]$.

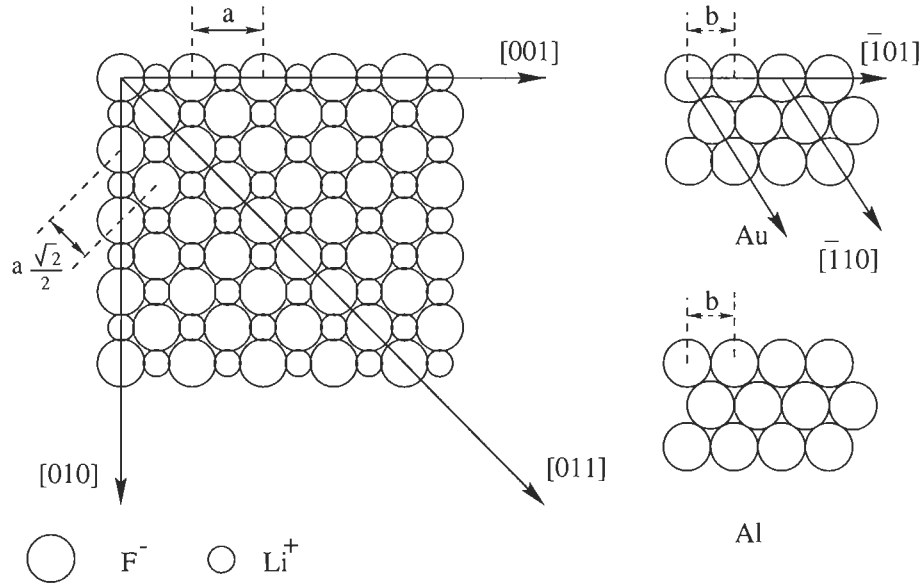


Figure 3. Plan de clivage $(100)\text{LiF}$ du substrat et plan d'accolement (111) d'un cristallite d' Au ou d' Al .

Le plan d'accolement (plan de base) du cristallite d'or présente un arrangement (111) (Métois et al., 1972) et la distance interatomique est de 0.288nm ($b=0.144\text{nm}$). Ce cristallite d'or va donc perturber le réseau cristallin du plan $(100)\text{LiF}$ en créant un champ de déformation qui va s'étendre bien au-delà du diamètre moyen $\langle \bar{d} \rangle$ du cristallite. On peut donc envisager, compte tenu de l'anisotropie du plan $(100)\text{LiF}$, être en présence d'un champ de déformation (ou champ de contrainte) anisotrope mettant en évidence l'anisotropie du plan (100) du substrat. Comme il sera montré plus loin les fonctions de distribution révèlent effectivement une symétrie.

4.1.2 Fonctions de distribution

Pour bien mettre en évidence l'anisotropie du substrat, nous avons réduit l'ouverture des cadrans en deçà de 3 degrés pour ainsi découpler le plus possible les interactions. La figure 4 montre le repérage des différents cadrans par rapport à une origine quelconque (0°).

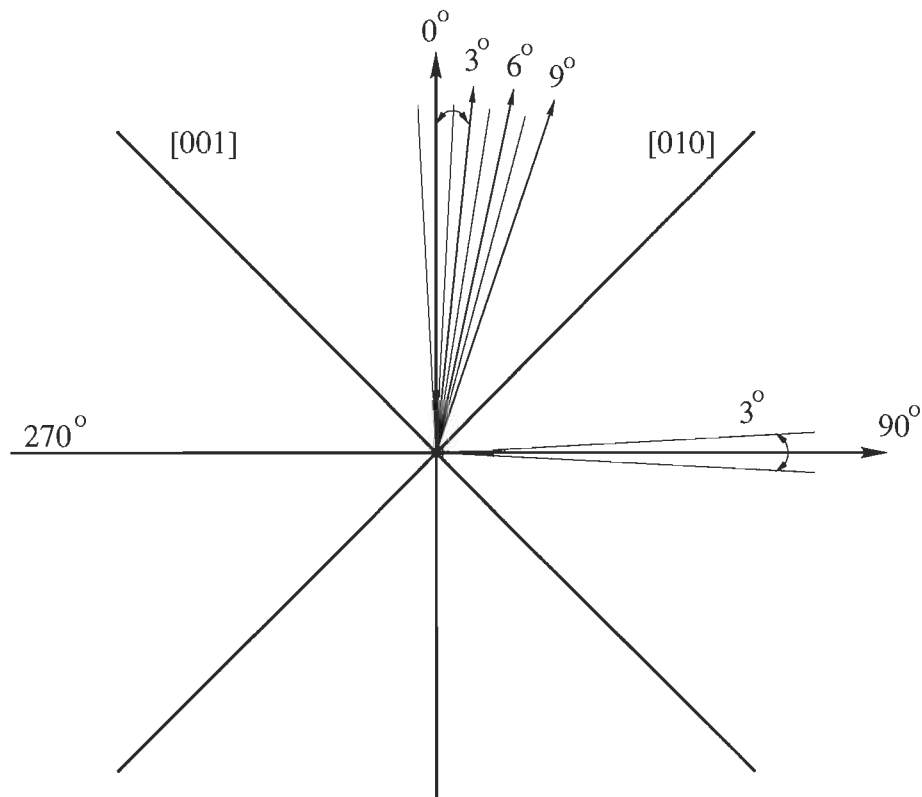


Figure 4. Schématisation des cadrans de 3° .

Expérimentalement on a obtenu des fonctions de distribution radiales identiques dans les cadrans suivants: 3, 6, 9, 15, 21, 24, 33, 36, 39, 47, 48, 51, 54, 57, 66, 69, 81, 84 et 87 degrés. On remarque par ailleurs que les distributions sont identiques pour les couples suivants: 30 et 60 degrés; 0 et 90 degrés; 18 et 72 degrés; 12

et 78 degrés. Sur la figure 5 on peut voir les fonctions de distribution radiales correspondantes. Ces fonctions représentent une collection de cristallites d'*Au* sur (100)*LiF* dans les cadrans: 3; 45; 0(90); 12(78); 18(72); 27(63); 30(60) degrés par rapport au cadran 0° pris comme origine.

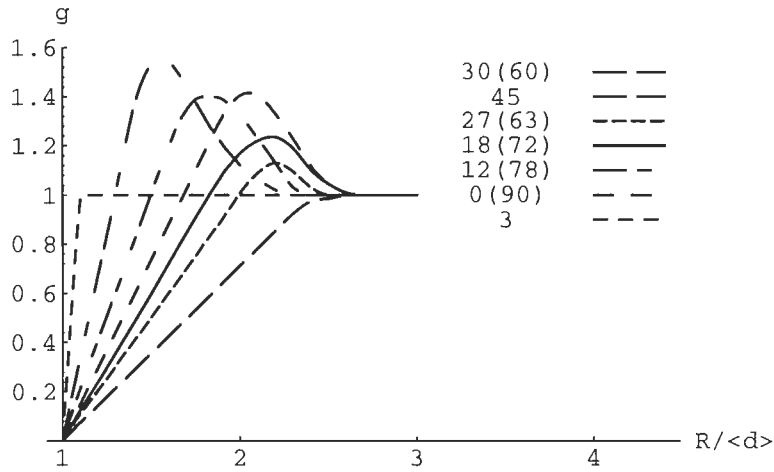


Figure 5. Fonctions de distribution radiales d'une collection de cristallites d'or sur (100)*LiF* dans les cadrans : 3; 45; 0(90); 12(78); 18(72); 27(63); 30(60) degrés par rapport au cadran 0° pris comme origine.

Il faut noter que toutes les fonctions de distribution radiales de la figure 5 sont différentes, donc on peut affirmer que les interactions entre les cristallites sur un tel substrat sont anisotropes et fonctions de la direction cristalline considérée. Par ailleurs, le maximum de ces fonctions n'a pas tous la même amplitude. Dans les travaux Essid M (1994), on peut voir que l'amplitude du maximum est directement reliée à la densité ρ (nombre de cristallites par unité de surface) de l'échantillon étudié ou au potentiel d'interaction entre cristallites. Pour vérifier l'anisotropie du système nous allons calculer les potentiels correspondants à ces fonctions de distribution radiales.

4.1.3 Potentiels respectifs

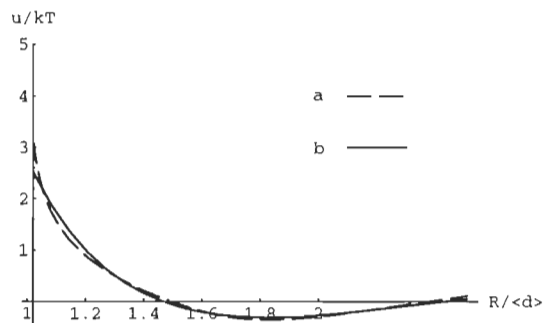


Figure 6. Potentiels d'interaction entre paire de cristallites d'*Au* obtenus par l'interpolation non-linéaire (a) et linéaire (b) dans le cadran 12(78) en fonction de $R/\langle d \rangle$.

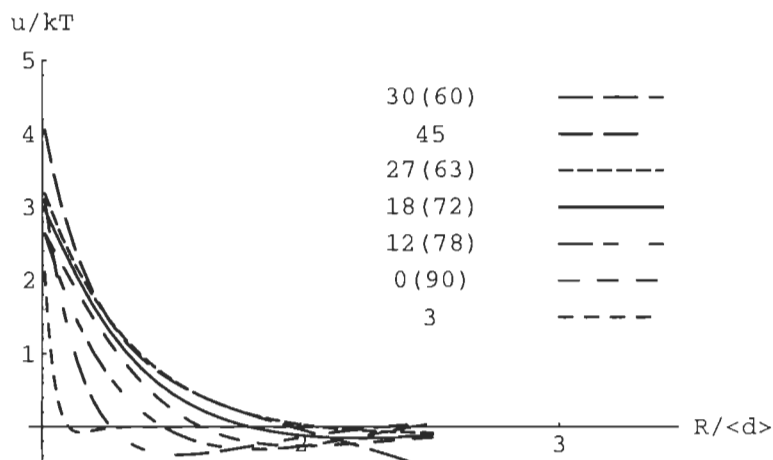


Figure 7. Potentiels d'interaction entre paire de cristallites d'*Au* sur un substrat (100)*LiF* obtenus dans différents cadrans en fonction de $R/\langle d \rangle$ (interpolation non-linéaire).

Nous avons mentionné dans le chapitre 3, que pour l'analyse numérique nous avons choisi les deux types d'interpolation: linéaire et non-linéaire.

La figure 6 montre la différence entre les courbes de potentiel obtenus par l'interpolation linéaire et non-linéaire dans le cadran 12(78). En regardant ces courbes, on a considéré que dans le domaine d'approche des cristallites, l'interpolation non-linéaire est plus précise que l'interpolation linéaire. Les potentiels finaux obtenus par l'analyse numérique à partir des six fonctions de distribution radiales sont représentés sur la fig.7.

Les courbes de potentiels se distinguent les unes des autres par leur minimum et leur maximum. On peut remarquer que le potentiel tend vers la valeur zéro quand $R/\langle d \rangle \rightarrow 2.4$ et possède une valeur différente lorsqu'on s'approche de $R/\langle d \rangle \rightarrow 1.01$. Le minimum se déplace vers les grandes valeurs de R pour certaines directions. Ce minimum représente pour une direction donnée, la position la plus probable du premier voisin. Une fois de plus on peut conclure, vu les différences entre les hauteurs de barrière de potentiel que les déformations induites par les cristallites dans le substrat sont anisotropes, donc la direction d'approche des cristallites influence nécessairement l'acte de coalescence dynamique.

4.1.4 Force d'interaction et facteur de réussite à l'acte de coalescence

Le mécanisme de coalescence comporte deux étapes successives. La première étape est la mise en contact de deux cristallites par migration brownienne de l'un vers l'autre, la deuxième peut être la coalescence qu'on peut caractériser par un coefficient d'efficacité δ . Ce coefficient (ou facteur de réussite à l'acte de coalescence) δ est un indice qui met en évidence le nombre de chocs nécessaires entre deux cristallites pour obtenir un acte de coalescence.

Le facteur δ fût mesuré expérimentalement par Métois et al. (1974) et leurs résultats ont permis de trouver un facteur de l'ordre de 10^{-6} pour une température

de substrat de 373 K. À partir des courbes de potentiel, il est possible de calculer le facteur δ . L'observation de l'évolution des couches minces à l'aide du microscope électronique nous permet de saisir que la plupart des chocs intercrystallites ne sont pas efficaces. Une barrière d'activation ΔG doit être surmontée au cours du choc (Kern et Le Lay, 1974) :

$$\Delta G = \int_{50}^{\infty} F(R) dR, \quad (4.1)$$

où $F(R) = - du/dR$ représente la force d'interaction entre cristallites. Finalement le facteur de réussite à l'acte de coalescence s'obtient à l'aide de la relation :

$$\delta = \exp\left[-\frac{\Delta G}{R^*T}\right], \quad (4.2)$$

où T est la température de mise en équilibre dynamique de la collection de cristallites (ou température du recuit), et R^* la constante des gaz parfaits.

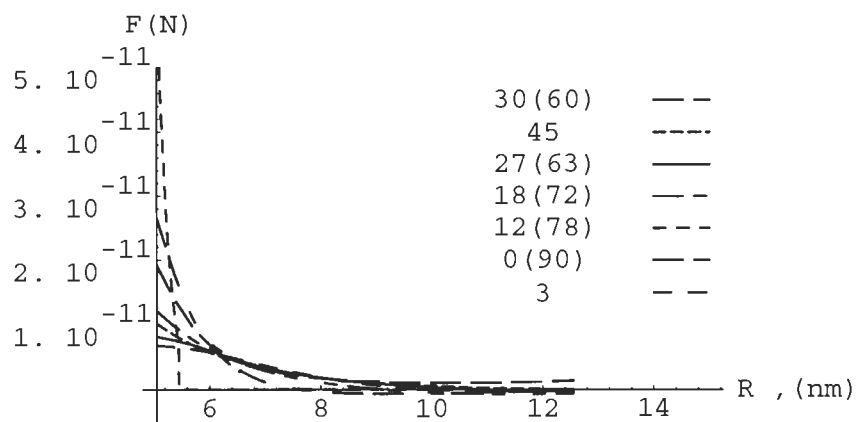


Figure 8. Forces d'interaction entre cristallites d'*Au* sur un substrat (100)*LiF* en fonction de R pour les différents cadrans considérés dans la figure 5.

L'expression pour la force nous a permis de tracer les forces d'interaction correspondant aux potentiels obtenus pour les cadrans suivants: 3; 45; 0(90); 12(78); 18(72); 27(63); 30(60). Les courbes représentant les forces d'interaction, comme on peut voir sur la figure 8. sont différentes pour chaque cadran à cause d'une anisotropie du substrat. Pour les cadrans 45; 0(90); 12(78); 18(72); 27(63); 30(60), elles deviennent négligeables lorsque R est de l'ordre de $8 \times 10^{-8}m$. Le facteur δ peut ainsi être calculé pour tous les cadrans (tableau 4.1) pour une même plage du substrat. On l'a calculé en utilisant les deux types d'interpolation : linéaire et non-linéaire. Les valeurs trouvées sont en moyenne de l'ordre de 6×10^{-3} , ce qui est toujours très grand par rapport à la valeur expérimentale (6×10^{-6}) de Métois et al (1974).

Tableau 4.1

Facteur de réussite à l'acte de coalescence correspondant aux sept potentiels de la figure 7.

cadran (°)	$\delta \times 10^{-2}$ (non-linéaire)	$\delta \times 10^{-2}$ (linéaire)
3	12.8	43.8
45	4.7	14.4
27(63)	3.8	4.3
18(72)	4.6	4.7
12(78)	7.5	8.5
0(90)	6.1	5.4
30(60)	0.96	2.8

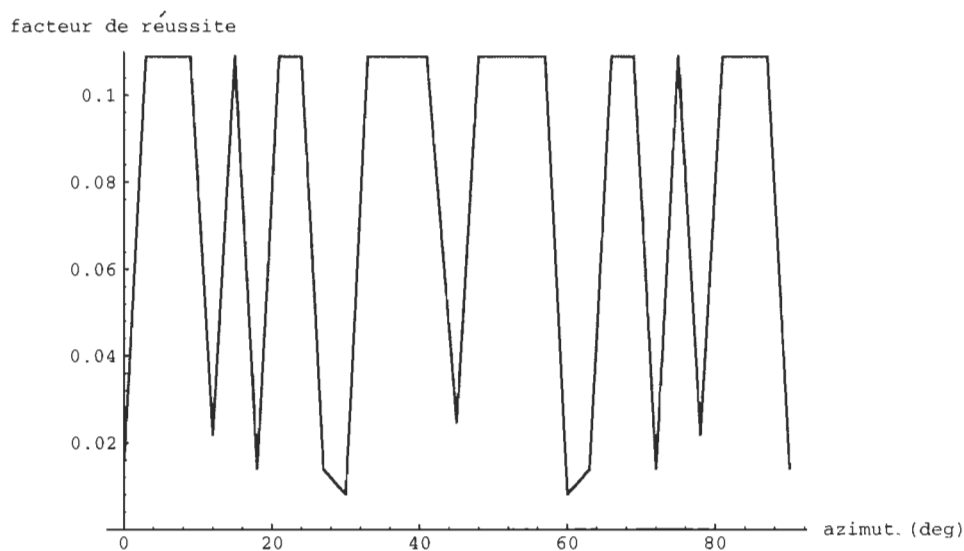


Figure 9. Facteur de réussite à l'acte de coalescence en fonction des cadrans considérés (direction azimutale d'approche des cristallites) cas de d'Au sur (100)*LiF* (interpolation linéaire).

Sur la figure 9 on peut voir la distribution azimutale du facteur de réussite à l'acte de coalescence pour les cadrans compris entre 0° et 90° . La figure 10 n'est autre que la distribution radiale de ce même facteur. Ces distributions ont été obtenues en utilisant une interpolation linéaire.

Les figures 9 et 10 mettent en évidence une anisotropie marquée et le rôle de celle-ci sur le facteur de réussite à l'acte de coalescence.

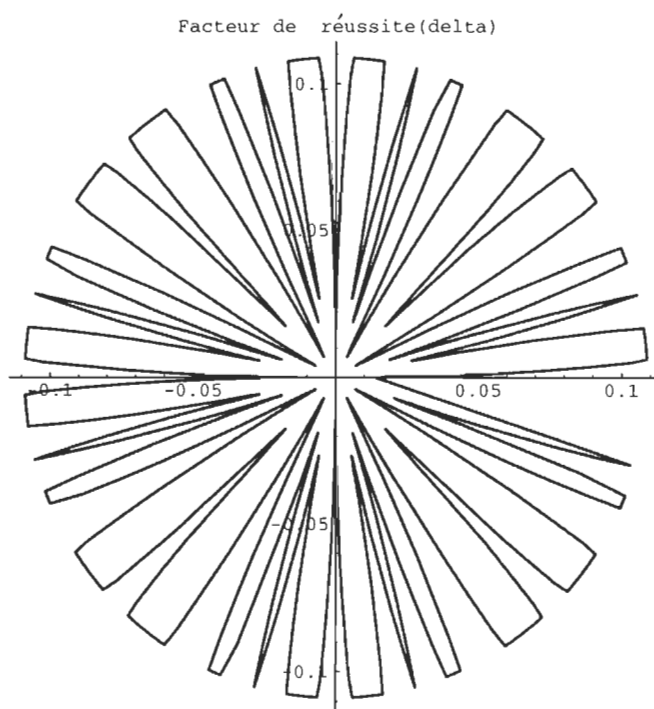


Figure 10. Distribution radiale du facteur de réussite à l'acte de coalescence. Interpolation linéaire (cas de l'*Au* sur *(100)LiF*).

Les figures 11 et 12 représentent les distributions azimutale et radiale du facteur de réussite à l'acte de coalescence obtenus en utilisant une interpolation non-linéaire. On remarque que la figure 12 montre exactement un champ de contrainte symétrique de type anisotrope.

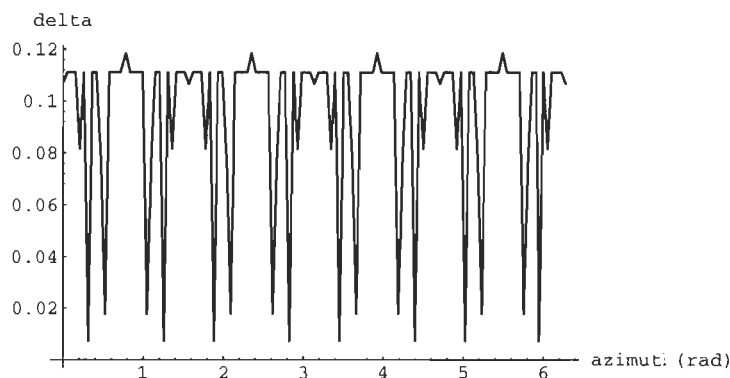


Figure 11. Facteur de réussite à l'acte de coalescence en fonction des cadrans considérés (direction azimutale d'approche des cristallites). Cas de l' Au sur $(100)LiF$ (interpolation non-linéaire).

4.1.5 Discussion

En analysant les deux distributions radiales du facteur de réussite à l'acte de coalescence (obtenu avec une interpolation linéaire et non-linéaire) nous avons conclu que la distribution radiale modifiée par une interpolation non-linéaire est plus précise et conduit à un champ de contrainte symétrique de type anisotrope. Le champ de contrainte développé lors d'un mécanisme d'approche de deux cristallites se présente sous la forme de lobes symétriques qui s'étendent bien au-delà des dimensions du dépôt, un peu comme un trèfle.

La coalescence des cristallites est plus aisée là où les champs de contraintes mécaniques sont plus faibles (on peut voir les "trous" sur la figure 12) et la coalescence est plus difficile dans les régions "rosettes", là où les contraintes sont plus élevées. Ce champ de contraintes a la même forme que les "rosettes de frittage" étudiées par Geguzin et Matsokin (voir la figure 13).

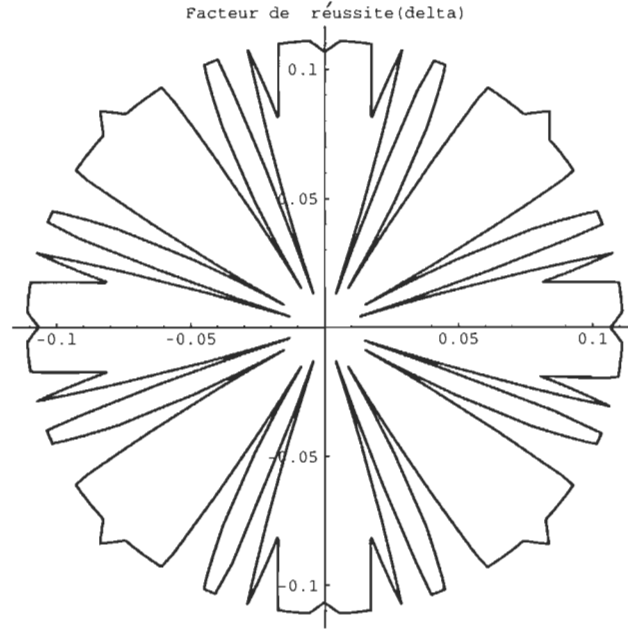


Figure 12. Distribution radiale du facteur de réussite à l'acte de coalescence. Interpolation non-linéaire (cas de l'*Au* sur $(100)LiF$).

Donc, on peut considerer que les conditions expérimentales de ces auteurs étaient très différentes de nos conditions, mais nous avons obtenu la même forme du champ de contrainte.

Les contraintes qui se forment dans la zone de contact entre le substrat et le cristallite peuvent essentiellement déterminer les caractéristiques de couches minces et de la qualité des composants électroniques. Au début du chapitre, nous avons expliqué l'origine du champ de contrainte comme étant le résultat d'une discordance paramétrique. Nous avons analysé le cristal de *LiF* qui a un réseau cubique à faces centrées composé d'ions de fluorure et d'ions de lithium et les déformations engendrées par le cristallite d'or dans le substrat selon différentes directions cristallographiques.

4.1.6 Conclusion

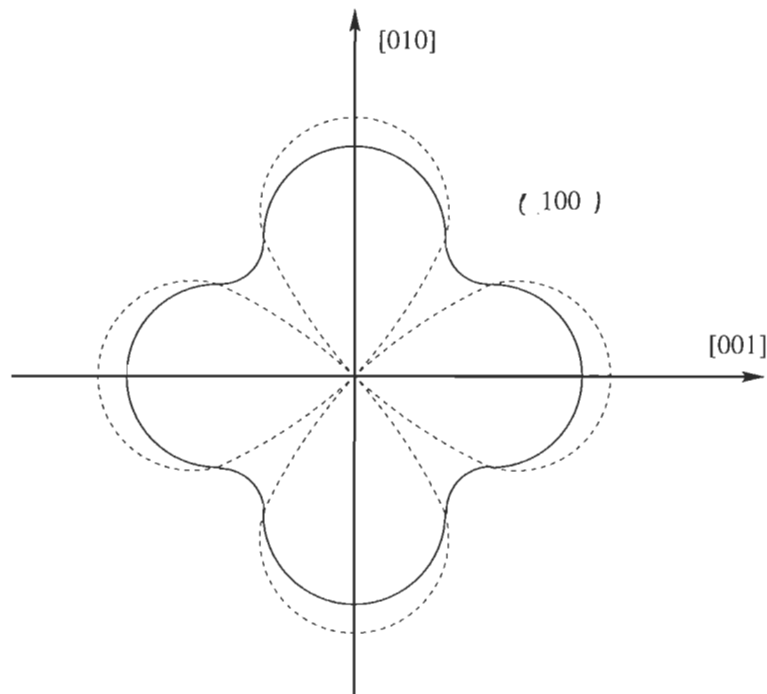


Figure 13. Champ de contraintes étudié par Geguzin (1974).
Cas du $LiF/(100)LiF$ (... champ de contraintes constant, -
champ de contraintes moyen).

Nous avons obtenu les résultats qui mettent en évidence l'anisotropie du substrat par l'analyse de fonction distribution radiale. Cette anisotropie est due en partie à la structure du plan de clivage $(100)LiF$ qui intervient dans le processus de coalescence dynamique par d'une anisotropie de surface.

Notre modèle est basé sur les travaux de Geguzin (1974) et Matsokin (1993). Les conditions expérimentales de ces auteurs étaient très différentes de nos conditions, mais nous avons obtenu des résultats identiques par une analyse statistique. Le champ de contrainte généré par le cristallite sur le substrat s'étend bien au-delà des dimensions réelles du cristallite et possède une forme anisotrope et symétrique. Nous sommes donc convaincu que le champ de contrainte n'est pas

uniforme et que la différence entre les courbes de potentiel est une conséquence de l'anisotropie du substrat.

Comme l'ouverture des cadrans est de 3° par rapport à un axe quelconque du substrat, le potentiel obtenu est un potentiel d'interaction moyen dans chacun des cadrans. Pour bien mettre en évidence l'anisotropie, on va réduire l'ouverture des cadrans à moins de 3° pour ainsi découpler le plus possible les interactions. Dans ce qui suit nous avons fait des mesures de fonctions de distribution radiales dans des cadrans de l'ordre du degré, en couvrant tout le plan cartésien.

4.2 Étude comparative des résultats

Dans la deuxième partie on a étudié les trois couples suivants : Au sur $(100)LiF$; Al sur $(100)LiF$; Al sur $(100)KF$. Ce qui nous permet d'étudier le rôle du dépôt (LiF/Au ; LiF/Al) et le rôle du substrat (LiF/Al ; KF/Al) sur les interactions entre les cristallites formant le dépôt.

4.2.1 Paramètre de maille et discordance paramétrique

Les substrats LiF et KF sont des halogénures alcalins avec un réseau cubique à faces centrées. L'on prévoit donc que lors d'une perturbation mécanique les déformations résultantes dans les substrats seront différentes selon la direction cristallographique considérée.

Pour mesurer les fonctions de distribution radiales, nous avons utilisé la même méthode que celle expliquée au chapitre 2. Nous avons réduit l'ouverture des cadrans à 1° pour ainsi découpler le plus possible les interactions. La fonction de distribution radiale ($g(r)$) est toujours mesurée à partir d'une micrographie électronique.

On a calculé le paramètre de a' (" paramètre de maille " ou distance inter-

atomique dans une direction donnée) et les angles correspondants pour les substrats LiF et KF (voir tableau 4.2a). Sur les substrats (LiF , KF) les cristallites (Au , Al) présentent un plan d'accolement (111) et une distance interatomique b ($b = 0.14315$ nm pour l' Al et $b = 0.1441$ nm pour l' Au) qui est plus petite que le paramètre de maille (0.403 nm pour le LiF et 0.535 nm pour le KF) du substrat. Le réseau cristallin du plan (100) sera perturbé au contact du cristallite, ce qui va créer un champ de contrainte mécanique. On a déjà montré que le plan (100) du substrat étant anisotrope, le champ de contrainte l'est aussi.

L'existence du champ de contrainte dans la zone de contact est le résultat de la discordance paramétrique (misfit) entre le réseau du substrat et celui du dépôt. Nous avons calculé le misfit (M) pour les différents cadrans en utilisant la relation suivante:

$$M = \frac{a' - b}{a'} \times 100. \quad (4.3)$$

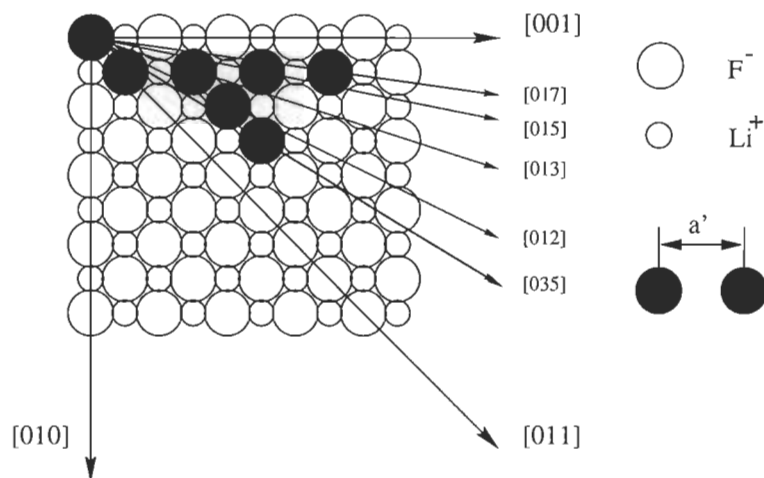


Figure 14. Plan de clivage $(100)\text{LiF}$ du substrat avec les paramètres de "maille" (a') dans des directions différentes.

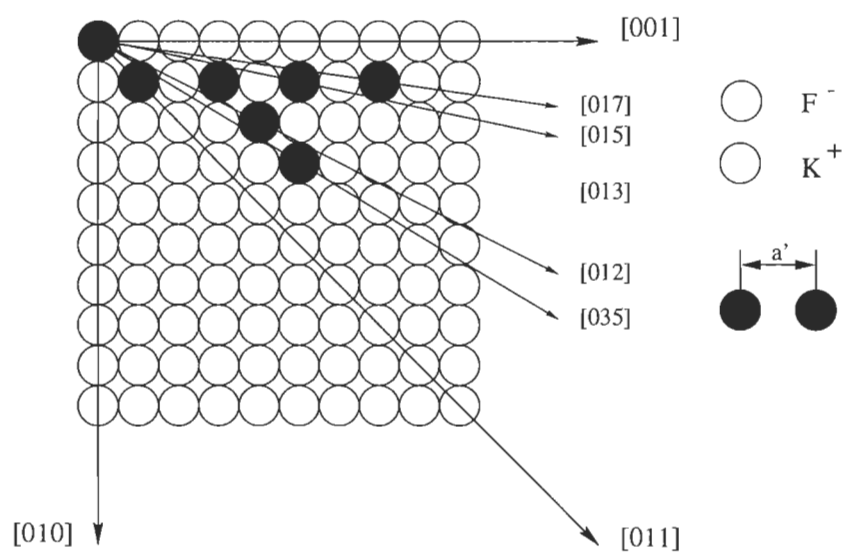


Figure 15. Plan de clivage $(100)\text{KF}$ du substrat avec les paramètres de "maille" (a') dans des directions différentes.

Le tableau 4.2a, p.52, donne les misfits dans les directions différentes. On peut constater, que les valeurs des misfits sont presque égales pour les différents dépôts (Al , Au) avec un même substrat et sont distincts pour les différents substrats (LiF , KF) avec un même dépôt dans les directions données. La discordance paramétrique est plus grande dans la direction $[710]$ (angle correspondant: $8^\circ 13'$; direction $[100]$ prise comme origine) et est plus petite dans la direction $[110]$ (angle correspondant: 45° , direction $[100]$ pris comme origine).

4.2.2 Fonctions de distribution radiales et potentiels respectifs

Les fonctions de distribution radiales et les potentiels respectifs ont été évalués dans six directions différentes pour les couples LiF/Au et LiF/Al et dans sept directions pour le couple KF/Al . Dans le tableau 4.2a on peut voir les directions et les angles correspondants. Les figures 16, 17 et 18 représentent les fonctions de $g(r)$ pour les différents couples.

On peut remarquer que les fonctions de distribution radiales se distinguent les unes des autres par leur maximum et leur pente initiale. Pour tous les couples dépôt-substrat l'amplitude de g est plus grande dans la direction $[110]$ (45°), ce qui nous permet de conclure en première approximation que les interactions entre cristallites sont plus grandes lorsque ceux-ci s'approchent l'un de l'autre dans cette direction. Par contre la direction $[710]$ ($8^\circ 13'$) la distance entre les ions du substrat est très grande ($a = 1.4248$ nm pour LiF et $a = 1.8915$ nm pour KF), donc les interactions entre cristallites sont très faibles.

Il est donc évident que la direction d'approche des cristallites est un facteur important dans un processus de coalescence dynamique.

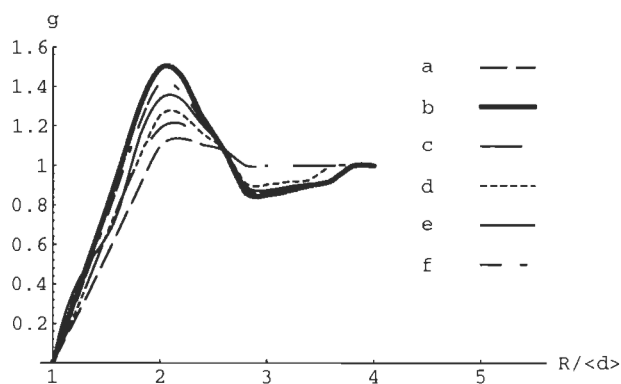


Figure 16. Fonctions de distribution radiales d'une collection de cristallites d'*Au* sur un plan (100)*LiF* pour les angles suivants : a) 30°96; b) 45°; c) 11°31; d) 26°57; e) 18°43; f) 0°.

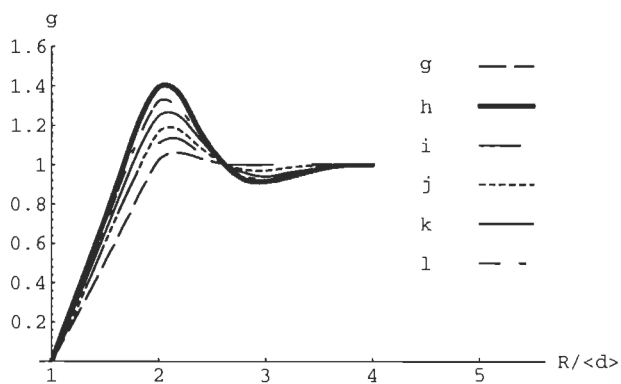


Figure 17. Fonctions de distribution radiales d'une collection de cristallites d'*Al* sur un plan (100)*LiF* pour les angles suivants: g) 30°96; h) 45°; i) 11°31; j) 26°57; k) 18°43; l) 0°.

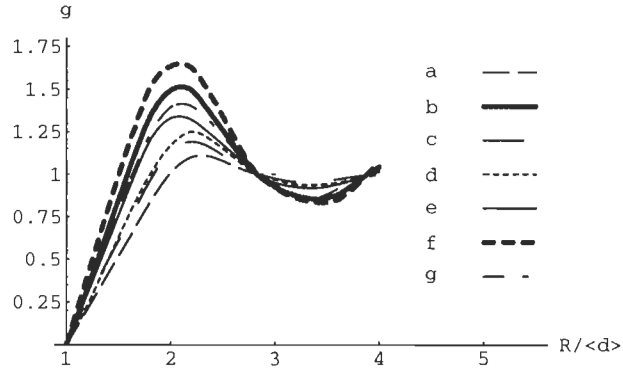


Figure 18. Fonctions de distribution radiales d'une collection de cristallites d'*Al* sur un plan $(100)KF$ pour les angles suivants : a) $8^{\circ}13$; b) $30^{\circ}96$; c) $11^{\circ}31$; d) $26^{\circ}57$; e) $18^{\circ}43$; f) 0° ; g) 45° .

Les figures 16 et 17 mettent en évidence le rôle joué par le dépôt lorsque le substrat est identique. Il semble donc que la nature du dépôt est peu d'influence sur les fonctions de distribution radiales. Dans le cas de la figure 18 comparée à la figure 17, on peut voir le rôle joué par le substrat pour un même dépôt. Il semble donc à la vue des figures 16, 17 et 18 que la nature du substrat joue un rôle plus important que la nature du dépôt.

Les potentiels finaux obtenus par l'analyse numérique pour *LiF/Al* et *LiF/Au* sont représentés sur la figure 19.

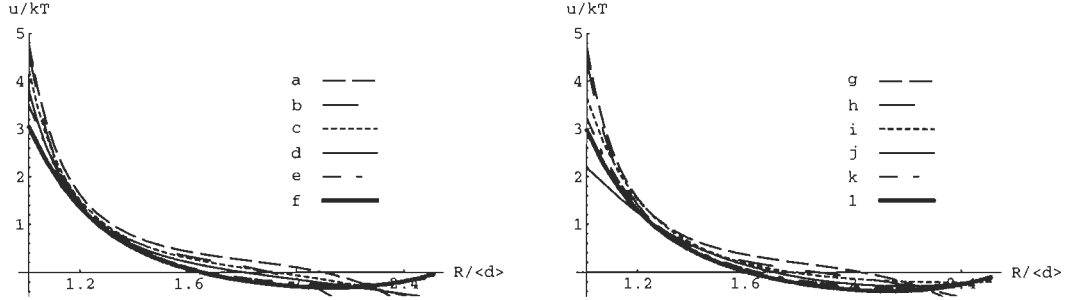


Figure 19. Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales présentées dans les figures: 16 (a,b,c,d,e,f) et 17 (g,h,i,j,k,l).

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré que le potentiel d'interaction dépend de la direction suivant laquelle les cristallites interagissent. En effet, on peut voir que les courbes de potentiel sont nettement distinctes. On remarque aussi l'évolution du minimum et sa position. Le minimum se déplace vers les grandes valeurs de R . Nous avons déjà mentionné que ce minimum représente pour une direction donnée, la position la plus probable du premier voisin. Pour les directions $[035]$, $[012]$, $[013]$, $[015]$ (LiF/Al) on ne trouve pas de minimum (voir tableau 4.2b) donc, la position du premier voisin (ou position d'équilibre) est indéfinie.

Dans la figure 20, on présente les mêmes courbes mais pour un intervalle compris entre $R/\langle d \rangle = 1.01$ et $R/\langle d \rangle = 1.2$. Ce changement d'échelle permet de mieux distinguer les différences entre les potentiels. Il faut noter que dans cet intervalle on voit la différence entre les courbes de potentiel pour un seul couple et aussi la différence entre courbes pour les différents couples avec même dépôt.

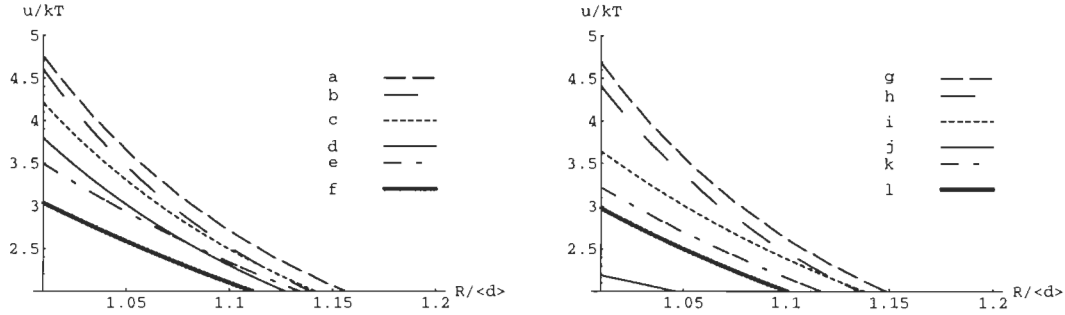


Figure 20. Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales en fonction de $R/\langle d \rangle$ entre 1.01 et 1.2 pour les cristaux: LiF/Al (a) 30°96, b) 11°31, c) 26°57, d) 18°43, e) 0°, f) 45°) et LiF/Au (g) 30°96, h) 11°31, i) 26°57, j) 18°43, k) 0°, l) 45°).

Les potentiels possèdent une valeur différente lorsqu'on s'approche de $R/\langle d \rangle = 1.01$. Dans le tableau 4.2b on trouve le maximum observés sur les courbes de potentiels, pour les couples: LiF/Al et LiF/Au . Pour trouver le minimum (si minimum il y a), on analyse les courbes dans un intervalle de $R/\langle d \rangle = 1.8$ à $R/\langle d \rangle = 2.4$ (voir fig.21). En analysant la figure 21, on constate que seules les directions 45° et 0° pour le couple LiF/Al et les directions 18°43, 11°31, 26°57, 0° et 45° pour le couple LiF/Au donnent naissance à un potentiel d'interaction qui présente un minimum. Donc, toute notre attention s'est portée sur le déplacement de ce minimum vers les grandes valeurs de $R/\langle d \rangle$. On répète que ce minimum représente, pour une direction donnée, la position la plus probable du premier voisin (cristallite). Si ce dernier n'a pas l'énergie nécessaire pour sortir de ce puit de potentiel, il restera à cette position d'équilibre.

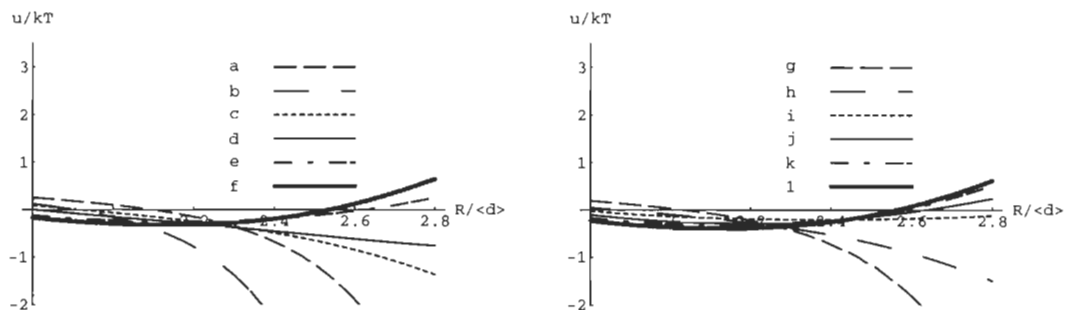


Figure 21. Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales en fonction de $R/\langle d \rangle$ entre 1.8 et 2.6 pour les couples: LiF/Al (a) $30^\circ 96$, b) $11^\circ 31$, c) $26^\circ 57$, d) $18^\circ 43$, e) 0° , f) 45°) et LiF/Au (g) $30^\circ 96$, h) $11^\circ 31$, i) $26^\circ 57$, j) $18^\circ 43$, k) 0° , l) 45°).

Les minimums correspondant aux courbes de potentiel (les directions $[100]$ et $[110]$) se situent à environ 106 \AA pour les cristaux avec un même substrat (tableau 4.2b).



Figure 22. Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales de la figure 18.

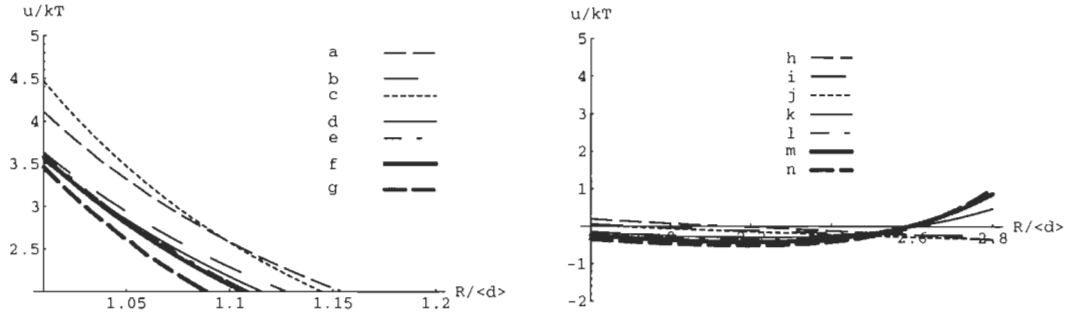


Figure 23. Potentiels finaux obtenus à partir des fonctions de distribution radiales en fonction de $R/\langle d \rangle$ entre 1.01 et 1.2 (a) 8°13, b) 30°96, c) 11°31, d) 26°57, e) 18°43, f) 0°, g) 45°) et de $R/\langle d \rangle$ entre 1.8 et 2.4 (h) 8°13, i) 30°96, j) 11°31, k) 26°57, l) 18°43, m) 0°, n) 45°) pour le couple KF/Al .

La figure 22 montre les potentiels finaux obtenus à partir des sept fonctions de distribution radiales de la figure 18 pour le couple KF/Al . On note que les courbes de potentiel sont nettement distinctes entre elles. Mais on peut voir clairement la différence pour les mêmes courbes et dans les mêmes directions pour le couple LiF/Al . Par exemple, pour KF/Al et dans la direction 45°, le potentiel tend vers valeur zéro quand $R/\langle d \rangle \rightarrow 1.4$, alors que pour le couple LiF/Al et dans la même direction, le potentiel tend vers valeur zéro quand $R/\langle d \rangle \rightarrow 1.6$. Il y a aussi une différence entre les valeurs maximales pour ces couples lorsqu'on s'approche de $R/\langle d \rangle = 1.01$ (voir tableau 4.2b).

La figure 23 représente les mêmes courbes mais dans des intervalles compris entre $R/\langle d \rangle = 1.01$ et $R/\langle d \rangle = 1.2$ et dans un intervalle de $R/\langle d \rangle = 1.8$ à $R/\langle d \rangle = 2.4$. Dans la figure 23 les courbes des potentiels se distinguent nettement les uns des autres par leur maximum et leur minimum. En analysant cette figure, on remarque que six courbes présentent un minimum (directions :

26°57, 18°43, 30°96, 11°31, 0° et 45°). Pour les deux dernières courbes (les directions [100] et [110]), le minimum se situe à environ 110 Å, ce qui est une position d'équilibre plus éloignée que celle observée pour le couple LiF/Al toujours pour ces directions. Il est donc évident que le substrat joue un rôle plus important que le dépôt dans un processus de la coalescence dynamique. L'interprétation de ces résultats est reportée à la conclusion, car avant de conclure il serait intéressant de calculer de facteur d'efficacité de choc δ (ou facteur de réussite à l'acte de coalescence), correspondant aux potentiels finaux pour les trois différents couples (LiF/Al , LiF/Au , KF/Al).

4.2.3 Force d'interaction et facteur de réussite à l'acte de coalescence

Nous avons expliqué au début de ce chapitre que les courbes de potentiel permettent d'obtenir le facteur d'efficacité de choc δ . Ce facteur est un indice qui met en évidence le nombre de chocs nécessaires entre deux cristallites pour obtenir un acte de coalescence. Nous avons donc calculé la force d'interaction entre paire de cristallites et la barrière d'activation ΔG , qui doit être surmontée au cours du choc pour mener à l'acte de coalescence.

L'équation $F(R) = - du/dR$, nous a permis de tracer la force d'interaction correspondant aux potentiels pour les trois couples. Ces forces, comme on peut le voir dans la figure 24, sont presque toutes identiques pour différents dépôts avec un même substrat. Pour les différents substrats (LiF et KF) les courbes de potentiel se distinguent nettement par leur maximum. La figure 25 montre que les forces d'interaction pour toutes les directions deviennent négligeables à partir de 9nm alors que pour le couple LiF/Al elles deviennent négligeables seulement pour quatre dernières fonctions (26°57, 18°43, 0° et 45°). Pour les directions 30°96 et 11°31 les courbes de potentiel présentent un minimum. Ce sont donc tous les aspects de la courbe de potentiel qui déterminent la force d'interaction et non la barrière de potentiel.

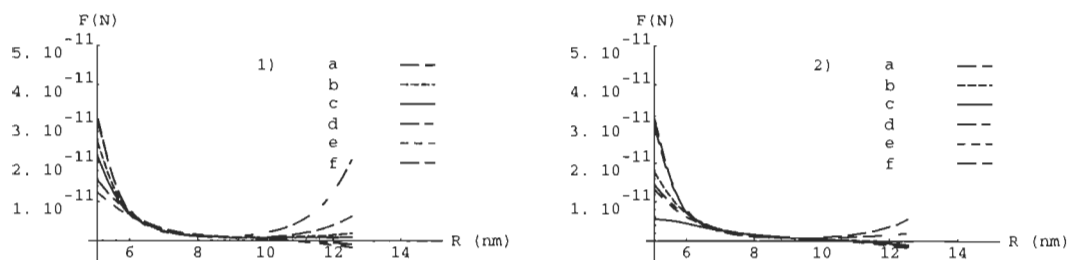


Figure 24. Force d'interaction entre paire de cristallites pour les couples LiF/Al (1) et LiF/Au (2) dans les directions suivantes : a) $30^\circ 96'$, b) $11^\circ 31'$, c) $26^\circ 57'$, d) $18^\circ 43'$, e) 0° et f) 45° .

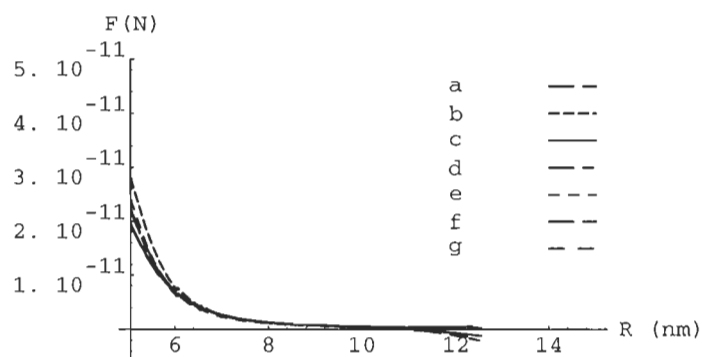


Figure 25. Force d'interaction entre paire de cristallites pour le couple KF/Al dans les directions suivantes : a) $8^\circ 13'$, b) $30^\circ 96'$, c) $11^\circ 31'$, d) $26^\circ 57'$, e) $18^\circ 43'$, f) 0° et g) 45° .

L'équation (4.1) détermine la barrière d'activation. Cette intégrale est évaluée entre 50 Å et 300 Å, 50 Å à cause de l'encombrement stérique et 300 Å, car $F(R)$ est négligeable à partir de 300 Å. Le facteur δ peut ensuite être calculé pour toutes les directions d'une plage du substrat (100)*LiF* et (100)*KF*. Dans le tableau 4.2b on peut trouver les valeurs de δ , les barrières de potentiel pour $R = 50, 100$ Å, les minimums de potentiel, les positions du potentiel $r=R(u_{min})/ < d >$ et les barrières d'activation (ΔG) pour les trois types de couples. On trouve que pour le couple *KF/Al*, δ varie entre 0.02×10^{-2} et 4.5×10^{-2} , et pour les couples *LiF/Al*, *Au* il varie entre 0.88×10^{-2} et 2.4×10^{-2} . Ce qui très différent du facteur δ trouvée expérimentalement (6×10^{-6}) par Métois et al. (1974). En analysant les valeurs de δ , il faut remarquer que ces facteurs sont presque identiques dans des directions données pour les couples constitués d'un même substrat et sont différents pour les couples avec un même dépôt.

4.2.4 Discussion

Sur le tableau 4.2b on retrouve les caractéristiques des potentiels pour trois types de couples à savoir : la valeur du potentiel pour $r/ < d > = 1.01$; la position du potentiel minimum $R(u_{min})/ < d >$; l'amplitude du minimum $u_{min}(u/kT)$; la barrière d'activation ΔG et le facteur de réussite à l'acte de coalescence. On note que pour chaque couple les courbes de potentiel sont presque indiscernables, quant à leur pente près de $r/ < d > = 1.01$; mais les barrières respectives de potentiel n'ont pas la même valeur (voir tabl.4.2b). Ces différentes hauteurs de barrière de potentiel mettent en évidence l'anisotropie des déformations induites par les cristallites dans le substrat. En comparant les données expérimentales pour $r/ < d > = 1.01$, on peut conclure que dans une même direction ces valeurs sont identiques pour les couples formés avec le même substrat et sont différentes pour les cristaux avec un même dépôt et des substrats différents.

L'observation des autres données expérimentales nous permet de saisir que

le substrat joue un rôle plus important dans les processus d'interaction entre cristallites que le dépôt. Par exemple, pour le couple LiF/Al , les positions du potentiel minimum et les amplitudes du minimum existent seulement pour les deux dernières directions (45° et 0°) et leur valeur ($R/\langle d \rangle_0=2,169$; $R/\langle d \rangle_{45}=2,133$) sont identiques aux valeurs du couple LiF/Au ($R/\langle d \rangle_0=2,163$; $R/\langle d \rangle_{45}=2,133$) mais pour le couple KF/Al , elles sont différentes ($R/\langle d \rangle_0=2,198$; $R/\langle d \rangle_{45}=2,188$). Comme nous l'avons déjà fait remarquer, le minimum est relié à la position la plus probable du premier voisin. Les paramètres des cristallites des deux substrats (LiF et KF) sont différents, pour les directions 0° et 45° , le paramètre de "maille" de KF est plus grand que celui présenté par le LiF , donc l'interaction entre les cristallites est plus probable dans le cas du cristal de LiF .

L'atténuation rapide de la force d'interaction indique combien il est facile pour un cristallite de s'approcher d'un autre, mais l'approche devient difficile avant le contact.

Le facteur δ étant calculé à partir de la force d'interaction entre cristallites, il est normal de trouver une corrélation entre ΔG et δ ; lorsque ΔG est grand le facteur δ est petit. Ils sont presque identiques dans toutes les directions pour les couples présentant le même substrat et sont différentes pour les couples constitués avec un même dépôt.

4.2.5 Conclusion

Nous avons lors de l'analyse de ces résultats montré le rôle du substrat et du dépôt dans les processus de coalescence dynamique ce qui explique à la fois l'orientation épitaxiale des cristallites et l'évolution de leur taille. On ajoute aussi que ces résultats mettent en évidence l'anisotropie des interactions entre paire de cristallites.

Comme nous l'avons mentionné déjà dans le paragraphe 4.1.6, le champ de contrainte généré par le cristallite sur le substrat s'étend bien au-delà des dimensions réelles du cristallite et possède une forme symétrique et anisotrope. L'existence d'un champ de contrainte dans la zone de contact est le résultat de la discordance paramétrique (misfit) des réseaux substrat - dépôt. Par exemple, pour la direction $[011]$ (45°) le paramètre de maille est plus petit (0.2849 nm pour LiF et 0.3783 nm pour KF), donc les cristallites du substrat et dépôt s'influencent mutuellement et l'interaction entre eux est plus probable.

Les résultats expérimentaux nous ont permis d'établir que le substrat joue un rôle plus important dans les processus d'interaction entre cristallites que le dépôt.

Tableau 4.2a


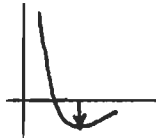
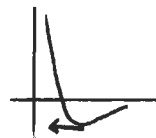
Les différents paramètres pour trois couples : LiF/Al ,
 LiF/Au et KF/Al .

angle ¹	substrat [hkl] a' (nm)	dépôt [hkl] b (nm)	misfit M (%)
	<i>LiF</i>	<i>Al</i>	
30°96	[035] / 1.175	$\bar{1}01$ 0.286	75.63
11°30	[015] / 1.027	$\bar{1}01$ 0.286	72.13
26°56	[012] / 0.901	$\bar{1}01$ 0.286	68.23
18°43	[013] / 0.668	$\bar{1}01$ 0.286	57.16
0°	[001] / 0.403	$\bar{1}01$ 0.286	28.96
45°	[011] / 0.285	$\bar{1}01$ 0.286	0.35
	<i>LiF</i>	<i>Au</i>	
30°96	[035] / 1.175	$\bar{1}01$ 0.288	75.47
11°30	[015] / 1.027	$\bar{1}01$ 0.288	71.95
26°56	[012] / 0.901	$\bar{1}01$ 0.288	68.02
18°43	[013] / 0.668	$\bar{1}01$ 0.288	56.88
0°	[001] / 0.403	$\bar{1}01$ 0.288	28.49
45°	[011] / 0.285	$\bar{1}01$ 0.288	1.05
	<i>KF</i>	<i>Al</i>	
8°13	[017] / 1.892	$\bar{1}01$ 0.286	84.86
30°96	[035] / 1.559	$\bar{1}01$ 0.286	81.64
11°30	[015] / 1.364	$\bar{1}01$ 0.286	79.01
26°56	[012] / 1.196	$\bar{1}01$ 0.286	76.07
18°43	[013] / 0.887	$\bar{1}01$ 0.286	67.73
0°	[001] / 0.535	$\bar{1}01$ 0.286	46.49
45°	[011] / 0.378	$\bar{1}01$ 0.286	24.32

¹ angle entre la direction [001] et la direction considérée sur le substrat.

Tableau 4.2b

Paramètres analysés pour trois couples : LiF/Al ,
 LiF/Au et KF/Al

angle ¹	u_{max} (u/kT) 	$r=R(u_{min})/<d>$ 	u_{min} (u/kT) 	$\Delta G \times 10^{-20}$ (Kcal/mol)	$\delta \times 10^{-2}$
LiF/Al	2	3	4	5	6
30°96	4.75	- ²	-	3.07	0.25
11°31	4.59	-	-	4.47	0.02
26°57	4.20	-	-	2.51	0.76
18°43	3.79	-	-	2.23	1.31
0°	3.49	2.17	- 0.25	1.87	2.7
45°	3.04	2.13	- 0.32	1.58	4.5
LiF/Au	2	3	4	5	6
30°96	4.68	-	-	3.03	0.27
11°31	4.40	2.22	-0.29	2.64	0.59
26°57	3.64	2.37	-0.21	1.98	2.1
18°43	2.19	0.91	2.50	1.19	9.7
0°	3.22	2.16	- 0.33	1.71	3.5
45°	2.97	2.13	- 0.39	1.58	4.6
KF/Al	2	3	4	5	6
8°13	4.11	-	-	2.20	1.4
30°96	3.63	2.90	-0.24	1.97	2.2
11°31	4.47	2.94	-0.35	2.43	0.88
26°57	3.54	2.21	-0.29	1.89	2.5
18°43	3.62	2.23	-0.36	1.95	2.2
0°	3.58	2.19	- 0.42	1.93	2.3
45°	3.46	2.18	- 0.51	1.90	2.4

¹ angle entre la direction [001] et la direction considérée sur le substrat.

² l'absence de valeur numérique signifie que le potentiel ne présente pas de minimum.

CONCLUSION GÉNÉRALE

Nous avons obtenu des résultats qui mettent en évidence l'anisotropie des interactions entre paire de cristallite sur un substrat. Cette anisotropie est due en partie à la structure du plan de clivage $(100)LiF$, ou $(100)KF$ qui intervient dans le processus de coalescence dynamique par l'intermédiaire d'une anisotropie de surface.

Notre modèle est basé sur les travaux de Geguzin et Matsokin. Les conditions expérimentales de ces auteurs étaient très différentes de nos conditions, mais nous avons obtenu les résultats identiques à ceux obtenus par une analyse de défauts formés par un champs de contraintes mécaniques.

L'existence de champ de contrainte dans la zone de contact est le résultat directe de la discordance paramétrique (misfit) des réseaux substrat et dépôt.

Le champ de contrainte généré par le cristallite sur le substrat monocristallin s'étend bien au-delà des dimensions réelles du cristallite et possède une forme anisotrope et symétrique. Le champ de contrainte n'est pas uniforme et la différence entre les courbes de potentiel d'interaction entre cristallites est une conséquence de l'anisotropie du substrat. L'observation des données expérimentales nous permet de saisir que le substrat joue un rôle plus important dans les processus d'interaction entre cristallites que le dépôt.

Nous avons utilisé les deux types d'interpolation dans l'analyse numérique: linéaire et non-linéaire. On peut considérer que l'interpolation non-linéaire est plus précise que l'interpolation linéaire. Ceci du au fait que l'interpolation linéaire introduit des fluctuations importantes lors de l'analyse numérique.

Nous avons obtenu un facteur de réussite à l'acte de coalescence compris entre 0.02×10^{-2} et 4.6×10^{-2} ce qui est encore bien loin des 6×10^{-6} trouvé

expérimentalement par l'analyse de la cinétique de coalescence dynamique. Nous pensons à cet effet que, mise à part l'anisotropie du substrat, l'orientation mutuelle des cristallites lors du contact est un autre facteur qui doit influencer l'acte de coalescence.

APPENDICE A

TABLEAUX

Tableau A1

Valeurs expérimentales de la fonction de distribution * dans différents cadrans, cas de l' $Al/(100)LiF$ ($\bar{d} = 50\text{\AA}$; $\rho = 3.0 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$; $T = 373K$).

R ** (\AA)	g1 (30°96)	g2 (11°31)	g3 (26°57)	g4 (18°43)	g5 (0°)	g6 (45°)
70	0.400	0.475	0.475	0.520	0.540	0.580
80	0.610	0.730	0.730	0.790	0.840	0.880
90	0.825	0.960	0.960	1.060	1.120	1.200
100	1.025	1.110	1.170	1.250	1.325	1.395
110	1.060	1.130	1.175	1.245	1.280	1.355
120	1.030	1.055	1.080	1.120	1.140	1.150
130	1.005	1.010	1.010	1.010	1.010	1.010
140	1.000	1.000	0.975	0.960	0.940	0.925
150	1.000	1.000	0.970	0.940	0.930	0.915
160	1.000	1.000	0.985	0.960	0.945	0.935
170	1.000	1.000	0.995	0.975	0.970	0.965
180	1.000	1.000	1.000	0.995	0.995	0.990
190	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
200	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
210	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000

* ± 0.001

** $\pm 0.1 \text{\AA}$

Tableau A2

Valeurs expérimentales de la fonction de distribution * dans différents cadrans,
cas de l' $Au/(100)LiF$ ($\bar{d} = 50\text{\AA}$; $\rho = 3.0 \times 10^{11}cm^{-2}$; $T = 373K$)

R ** (\AA)	g1 (30°96)	g2 (11°31)	g3 (26°57)	g4 (18°43)	g5 (0°)	g6 (45°)
70	0.429	0.509	0.509	0.557	0.579	0.621
80	0.654	0.782	0.782	0.746	0.890	0.943
90	0.884	1.029	1.029	1.136	1.200	1.286
100	1.098	1.189	1.256	1.339	1.420	1.495
110	1.136	1.211	1.259	1.334	1.371	1.452
120	1.104	1.131	1.157	1.199	1.221	1.232
130	1.077	1.082	1.082	1.082	1.082	1.082
140	1.000	1.000	0.910	0.896	0.877	0.863
150	1.000	1.000	0.905	0.877	0.868	0.854
160	1.000	1.000	0.919	0.896	0.882	0.873
170	1.000	1.000	0.929	0.910	0.905	0.901
180	1.000	1.000	1.000	0.929	0.929	0.924
190	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
200	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
210	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000

* ± 0.001

** $\pm 0.1 \text{\AA}$

Tableau A3

Valeurs expérimentales de la fonction de distribution * dans différents cadrans,
cas de l' $Al/(100)KF$ ($\bar{d} = 50\text{\AA}$; $\rho = 3.0 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$; $T = 373K$)

R ** (\AA)	g1 ($8^\circ 13$)	g2 ($30^\circ 96$)	g3 ($11^\circ 31$)	g4 ($26^\circ 57$)	g5 ($18^\circ 43$)	g6 (0°)	g7 (45°)
70	0.415	0.495	0.495	0.605	0.635	0.675	0.800
80	0.625	0.725	0.765	0.915	0.950	1.025	1.180
90	0.835	0.965	1.000	1.200	1.235	1.340	1.510
100	1.010	1.135	1.170	1.330	1.395	1.495	1.635
110	1.100	1.190	1.250	1.320	1.400	1.495	1.625
120	1.100	1.150	1.195	1.225	1.295	1.340	1.450
130	1.050	1.070	1.100	1.120	1.150	1.175	1.225
140	1.005	1.010	1.010	1.010	1.015	1.015	1.020
150	1.000	0.975	0.970	0.950	0.940	0.925	0.920
160	1.000	0.955	0.940	0.925	0.880	0.875	0.860
170	1.000	0.955	0.940	0.920	0.860	0.855	0.835
180	1.000	0.970	0.950	0.940	0.915	0.880	0.850
190	-	0.990	0.975	0.975	0.960	0.960	0.945
200	-	1.000	1.000	1.015	1.030	1.045	1.070
210	-	-	-	1.010	1.030	1.045	1.065
220	-	-	-	-	1.010	1.025	1.50
230	-	-	-	-	-	1.015	1.030
240	-	-	-	-	-	-	1.015

* ± 0.001

** $\pm 0.1 \text{\AA}$

APPENDICE B

PROGRAMMES

L'évaluation de K_{BGY} pour la fonction g_1 ($30^\circ 96$, LiF/Al), pris comme exemple.

```

g1
Do[y=g1[[x]];z=y[[1]];z=z/50;y[[1]]=z;g1[[x]]=y,{x,1,9}];
g1=g1//N;
ing1=Interpolation[g1][r];
g1=Table[{r,ing1},{r,1.01,2.21,0.1}];
Clear[a,b,c,d,e,f];
nlf1=NonlinearFit [g1,(f-(a r-b)(Exp[-c(r-1)])(Cos[dr-e])),r,
{a,b,c,d,e,f},
AccuracyGoal -> 20,PrecisionGoal -> 120, MaxIterations -> 200];
a=nlf1[[1]][[2]];
b=nlf1[[2]][[2]];
c=nlf1[[3]][[2]];
d=nlf1[[4]][[2]];
e=nlf1[[5]][[2]];
f=nlf1[[6]][[2]];
g=(f-(a r-b)(Exp[-c(r-1)])(Cos[dr-e]));
pot=-Log[g];
res = -2 r * (ArcCos[(R2 + r2 - s2)/(2Rr)))*
((f-(a r-b)(Exp[-c(r-1)])(Cos[dr-e])) - 1);
K=Table[R,
  Print[R];
  Table[s,
    bi=Abs[R-s];
    b1=If[bi< 1.01, 1.01,bi];
    NIntegrate[res,{r,b1,R+s}],
    {s,1.01,2.21,0.1}],
  {R,1.01,2.21,0.1}];
K=Re[K];
Save["1k",K];

```

où "g1" représente les données de la fonction de distribution g_1 ($30^\circ 96$, LiF/Al) (voir tabl.A1).

Valeurs de $K^1 \rightarrow (R/ < d > = 1.01)$		
$R/ < d >$	$s/ < d >$	K
1.01	1.01	1.03831693708182
	1.11	1.16799851854873
	1.21	1.29206070045492
	1.31	1.41871220751507
	1.41	1.56598431010237
	1.51	1.76611212994452
	1.61	2.07100963657159
	1.71	2.55884745054999
	1.81	3.34166091947998
	1.91	4.57413183042991
	2.01	6.46828130143876
	2.11	8.72665587206319
1.11	2.21	12.0605213675187
	1.01	1.02116704648815
	1.11	1.13381365988791
	1.21	1.24818531348953
	1.31	1.38054190689976
	1.41	1.56022802276291
	1.51	1.83470758502941
	1.61	2.27554443492068
	1.71	2.98510697328691
	1.81	4.10350354983080
	1.91	5.81491281999825
	2.01	8.35233969330014
1.21	2.11	12.0038837277137
	2.21	16.5315823959314
	1.01	0.98925435165963
	1.11	1.09442350765556
	1.21	1.21556849046950
	1.31	1.37962983626552
	1.41	1.63040684273628
	1.51	2.03413837728751
	1.61	2.68573369410149

¹ les valeurs des K sont à ± 0.0001 . Les valeurs affichées dans ce tableau sont celles données lors des calculs numériques.

$R/ < d >$	$s/ < d >$	K^1
1.31	1.01	0.95105014706693
	1.11	1.06372935778695
	1.21	1.21550574319719
	1.31	1.44699483171072
	1.41	1.81982874922849
	1.51	2.42252607867919
	1.61	3.37648494755687
	1.71	4.84119797713983
	1.81	7.01719781404908
	1.91	10.1444367094245
	2.01	14.4927604120250
	2.11	20.3398930718322
	2.21	27.9312348464394
1.41	1.01	0.91931788732671
	1.11	1.06154472396825
	1.21	1.27710767789000
	1.31	1.62355021517372
	1.41	2.18372240308324
	1.51	3.07147397986947
	1.61	4.43661645689147
	1.71	6.46773700328975
	1.81	9.39067089252423
	1.91	13.4594177691103
	2.01	18.9350045173667
	2.11	26.0462832197712
	2.21	34.9250399135745
1.51	1.01	0.91223411295139
	1.11	1.11490382205973
	1.21	1.43867490083686
	1.31	1.96131476550197
	1.41	2.78988652063007
	1.51	4.06551414648782
	1.61	5.96612041076487

¹ les valeurs des K sont à ± 0.0001 . Les valeurs affichées dans ce tableau sont celles données lors des calculs numériques.

Voici comment trouver le potentiel d'interaction utilisant l'interpolation non-linéaire

```

Do[k=K[[x]];X=0.91+x/10;ka[X]=k[[2]],{x,1,13,1}];
w=6;
Do[Print[w];
ps=pot;
Do[
sdp=0;
pe=ps;
n=Table[{r,ps},{r,1.01,2.21,0.1}];
der=D[pe,r];
  ps=Table[{R;
  Clear[r];
  k1=ka[R];
  u=Interpolation[k1][r];
  i=der u g;
  i1=NIntegrate[i,{r,1.01,2.21}];
  r=R;
  p=-Log[g] - w 10-5i1},{R,1.01,2.21,0.1}];
Clear[r,R,a1,b1,c1,d1,e1];
nlf2 = NonlinearFit[ps,(-a1/rb1)(Exp[-c1(r-1)])(Cos[d1r-e1]),r,{a1,b1,c1,d1,e1},
AccuracyGoal→10,PrecisionGoal→10,MaxIterations→200];
a1=nlf2[[1]][[2]];
b1=nlf2[[2]][[2]];
c1=nlf2[[3]][[2]];
d1=nlf2[[4]][[2]];
e1=nlf2[[5]][[2]];
ps=(-a1/rb1)(Exp[-c1(r-1)])(Cos[d1r-e1]);
n1 = Table[{r,ps},{r,1.01,2.21,0.1}];

```

```

Do[y=n[[x]];z=y[[2]];y1=n1[[x]];z1=y1[[2]];dif=Abs[z-z1];
sdp=sdp+dif,{x,1,7,1}];
Print[sdp];
Save["lpo",w,ps,sdp];
If[sdp < 1106 - 4},Break[]];
q=t+1,
{t,1,40}];
w=w+1;
If[w > 6,Quit[]];
p=j+1,
j,1,20]

```

Itérations succesives

w = 6

ps = (5.11381403362298 $\star E^{(9.56764346044362 \star (-1+r))} \star$
 $\text{Cos}[7.868942571119647 - 1.50546661203776 \star r]) / r^{16.67732272975809}$
sdp = 1.031708363754661

ps = (5.113937566479688 $\star E^{(9.57262106070932 \star (-1+r))} \star$
 $\text{Cos}[7.868604900443229 - 1.505059570360613 \star r]) / r^{16.68219558336823}$
sdp = 0.002155963181316389

ps = (5.11393779672727⁶ (9.57262887740499 $\star (-1+r)) \star$
 $\text{Cos}[7.868604099618858 - 1.505058628662664 \star r]) / r^{16.68220346440424}$
sdp = 3.453355895355337 $\star 10^{-6}$

LISTE DES RÉFÉRENCES

- BORN M. et GREEN H.S. 1949. "*A general kinetic theory of liquids*", Cambridge, Cambridge University Press.
- CABRERA N. 1965 " Sur le processus de formation des couches minces et les déformations et tensions qui en résultent ". *Mem. Sci. Rev. Met.*, 62, 205-10.
- CHAN E.M. 1977." Two-dimensional Born-Green-Yvon and other integraal equations ". *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 10, 3477-86.
- CHAN E.M. 1977. " Analysis of Au nuclei interactions on a (100)KCl surface ". *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 36 (3), 685-93.
- ESSID M. 1994. " Comportement collectif d'une population de cristallites d'Au sur un substrat (100)KCl ". Université du Québec à Trois-Rivières.
- GEGUZIN YA.E., DZUBA A.S., INDENBOM V.L. ET OVCHARENKO N.N. 1974. " Dislocations formed during the sintering of solid ("sintering rosettes") ". *Sov. Phys. Crystallogr.*, 18, 502.
- GUERCHI D. 1994. " Équation de Born- Green-Yvon pour un système à deux dimensions: cas isotrope et anisotrope ". Université du Québec à Trois-Rivières.
- KAPPUS W. 1978. " Two-dimensional Born-Green-Yvon equation with anisotropic interactions ". *J.Phys. C: Solid State Phys.*, 11, L565-67.
- KERN R. 1978. " Croissance épitaxique (aspects topologiques et structuraux) ". *Bull. Minéral.*, 101, 202-233.
- KERN R., MASSON A., ET MÉTOIS J.J. 1971 " Brownian migration of crystallites on a surface and relation with epitaxy. II Theory ". *Surface Sci.*, 27, 483-89.
- KIRKWOOD J.G. 1935. " Statistical mechanics of fluids mixtures ". *J.Chem.Phys.*,

3, 300-13.

KITTEL C. 1972. " *Introduction à la physique de l'état solide* ". (Paris: DUNOD).

MASSON A. ET KERN R. 1968. " Condensation de l'or sur du silicium clivé ". *J.Cryst. Growth.*, 2, 227.

MATSOKIN V.P. 1993. " Relaxation of stresses accompanied by the formation of dislocations and cracks on establishment of a contact between different crystals". *Phys. Solid State*, 35(9), 1216-21.

METOIS J.J., ZANGHI J.C., ERRE R. ET KERN R. 1974. " Coalescence par chocs intergranulaires dans les couches minces (cas de l'or sur (100)KCl)". *Thin Sol. Films*, 22, 331-50.

ROBADO C. 1995. " Interaction entre cristallites sur un substrat anisotrope (cas de l'Au sur (100)KCl) ". Université du Québec à Trois-Rivières.

STOOP L.C.A. 1974." *The layered structure of epitaxial bicrystals* ". University of South Africa.

YVON J. 1935. " *La théorie statistique des fluides et l'équation d'état* ", Paris, Herman.

ZANGHI J.C. 1975. " *Interactions entre cristallites sur un support* ". Université d'Aix Marseille.

ZANGHI J.C., METOIS J.J. ET KERN R. 1974. " Radial distribution function of nuclei formed by condensation on a clean substrate ". *Phil. Mag.*,29,1213.

ZANGHI J.C., METOIS J.J. ET KERN R. 1975. " Elastic interaction between small nuclei ". *Surface Sci.*, 52,556.